



TITLE:

量子ドットにおける熱電効果と揺らぎの定理(修士論文(2008年度))

AUTHOR(S):

伊與田, 英輝

CITATION:

伊與田, 英輝. 量子ドットにおける熱電効果と揺らぎの定理(修士論文(2008年度)). 物性研究 2009, 92(2): 188-245

ISSUE DATE:

2009-05-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/169133>

RIGHT:

量子ドットにおける熱電効果と揺らぎの定理

東京大学大学院理学系研究科 物性研究所加藤岳生研究室

伊與田英輝^{*1}

概要

メゾスコピック系では主に電流や電流揺らぎなどが線形応答の領域を超えて調べられているが、熱電効果はそれらの物理量とは相補的な情報を与える。熱電効果の研究には Kelvin-Onsager の関係式が使われる。Kelvin-Onsager の関係式を用いると測定の高い熱流を直接扱わずに済むが、これは線形応答の範囲でしか成り立たない。一方、統計力学の分野で知られている揺らぎの定理は、時間反転対称性もしくは局所詳細釣り合いのみによるため非線形非平衡領域でも広く成り立つ。この揺らぎの定理については、量子輸送系において完全計数統計の手法を用いて電流と熱流の揺らぎの定理を導出することができ、非線形領域における関係式を得ることが出来る。本研究ではこれを熱電効果に適用し、非線形領域における Peltier 係数を電流に関する輸送係数で表せることを示す。これは非線形応答領域における Kelvin-Onsager 関係式のような役割を果たし、近年行われている非線形効果を用いた熱電素子の研究に役立つと考えられる。形式としては Keldysh 形式及び完全計数統計の枠組みを用いて行い、具体例として二端子二重量子ドット AB リング干渉計における計算を示した。

目次

1	イントロダクション	189
1.1	研究の背景	190
1.2	研究の目的	195
1.3	本論文の構成	196
2	フォーマリズム	196
2.1	系	196
2.2	Keldysh 形式	198

^{*1} Email : iyoda@issp.u-tokyo.ac.jp

2.3	完全計数統計	211
3	結果	217
3.1	揺らぎの定理	218
3.2	拡張 Onsager 関係式	224
3.3	非線形 Kelvin・Onsager 関係式	226
4	まとめと展望	228
4.1	まとめ	228
4.2	今後の課題及び展望	229
付録 A	Keldysh 形式の関係式	230
付録 B	運動方程式の方法と Dyson 方程式	231
付録 C	特性関数の対称性	233
付録 D	熱力学第二法則や線形応答の式の導出	235
付録 E	AB リングの生成関数の計算	236
付録 F	実験との対応のためのノート	238

1 イントロダクション

本研究ではメゾスコピック系における熱電効果と非線形伝導について着目し、揺らぎの定理から得られる非線形における輸送係数の関係式の適用の仕方について議論する。本章でははじめに熱電効果を研究する利点と熱電効果の研究で良く用いられる Onsager の関係式について述べ、メゾスコピック系における非線形伝導の研究と Onsager の関係式の破れについて紹介する。次に非平衡の広いクラスで成立する関係式として、統計力学の分野で知られている揺らぎの定理を紹介する。そして本研究の目的を示し、本論文の構成を紹介する。

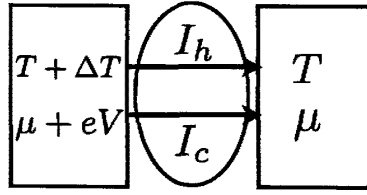


図1 熱電効果における一般的なセッティング

1.1 研究の背景

1.1.1 メゾスコピック系における熱電効果と非線形伝導

■メゾスコピック系における熱電効果 微細加工技術の発達により様々な量子輸送現象に関する研究が行われてきた [1]。研究の主流は電気伝導に関するものではあるが、熱的測定も電氣的な測定とは相補的な情報を与えることが知られている。例えば、熱電氣的な量は系の状態密度の粒子・正孔反対称性や輸送過程の影響を強く受ける。電子加熱の方法が確立されてから [2]、熱電氣的な性質は実験的・理論的に調べられている [3–14]。

良く知られている熱電効果として Peltier 効果と Seebeck 効果が挙げられる。二端子で等温環境を考えたとき、電流 I_c は熱流 I_h を伴う。この効果は Peltier 効果と呼ばれ [15]、次に定義される Peltier 係数で特徴付けられる：

$$\Pi = \frac{I_h}{I_c}. \quad (1)$$

もう一つの有名な熱電効果は Seebeck 効果である。これは温度が T_1 、 T_2 である二端子の温度差 $\Delta T = T_1 - T_2$ が熱起電力 V を誘起するという効果である。電流 I_c が 0 になるように温度差と逆方向に電圧 V をかけるとき、 V を ΔT で割ったものに負符号をつけたものが Seebeck 係数となる：

$$S_{TP} = - \left. \frac{V}{\Delta T} \right|_{I_c=0}. \quad (2)$$

これらの効果をメゾスコピック系の量子輸送において測定することを考える時、熱流の直接計測が難しいため Peltier 係数の測定は難しいが [2]、Seebeck 係数の測定は温度差の測定をすれば良いだけなので、Peltier 係数の測定よりもやさしい。文献 [7] の実験のセッティングを例に取り、具体的に熱電効果が輸送過程に敏感であることを見ることにする。量子ドットのゲート電圧を変化させて、電流のコンダクタンスと Seebeck 係数を測っている。実験のセッティングのスケッチを図 2 に示す。この系では高温では輸送に電子が

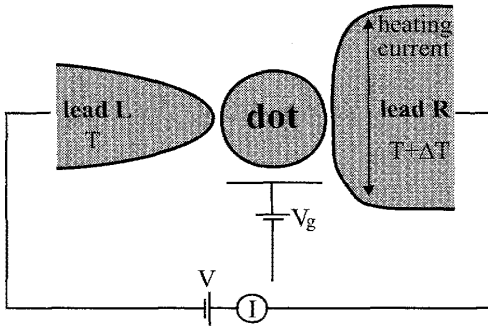


図2 文献 [7] の実験のセッティング

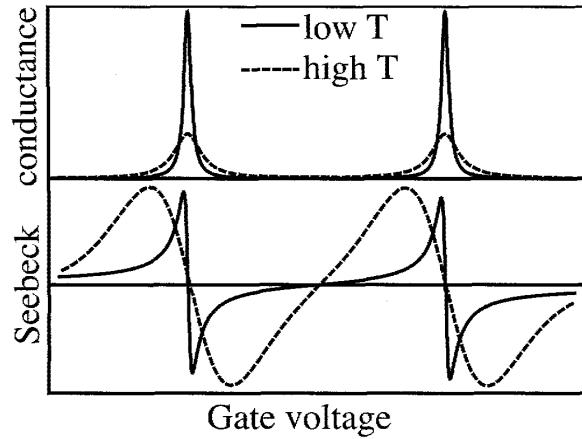


図3 文献 [7] のセットアップにおけるコンダクタンスと Seebeck 係数のゲート電圧依存性のスケッチ

一つ関与する Sequential tunneling が支配的であるのに対し、低温では輸送に電子が複数関与する cotunneling が支配的になるというクロスオーバーが起きることが知られている (図3)。コンダクタンスは高温でも低温でも Lorentz 型の振る舞いを示し、低温にしてもピークが鋭くなる程度の変化しか起こさない。一方、Seebeck 係数は高温では三角波型の振る舞いを示すが、温度を下げることでクロスオーバーが起きて、ゲート電圧依存性が大きく変化する。このように、輸送過程の変化に対して電流のコンダクタンスは鈍感だが、Seebeck 係数は敏感であることが分かる。

熱電効果の研究に際して良く用いられている関係式が電流と熱流に関する Onsager の相反定理である。これは電流と熱流の線形応答を

$$I_c = L_{00} \frac{V}{T} + L_{01} \frac{\Delta T}{T^2} \quad (3)$$

$$I_h = L_{10} \frac{V}{T} + L_{11} \frac{\Delta T}{T^2} \quad (4)$$

のように書いた時、 $L_{01} = L_{10}$ という式で表現される。ここで出てくる輸送係数は $L_{ij} = [C^{2-i-j} j^{i+j-1} Ks]$ のような単位を持つ。Onsager の相反定理 [16] を用いることで次のような Kelvin-Onsager 関係式が成り立つ：

$$S_{TP} = \frac{\Pi}{T}. \quad (5)$$

この式を用いることで、Peltier 係数を熱流を測定することなく求めることが出来る。

■メゾスコピック系における非線形伝導 この数年、メゾスコピック系における電氣的／熱的な伝導の両方において、非線形伝導に関する研究が行われている。電氣的な伝導においては多端子系に関する Onsager-Casimir の相反定理 [16, 17] がよく用いられていて、特に二端子系にこれを用いると電流の線形微分コンダクタンスが磁場に関して対称であることが分かる：

$$G(B) = G(-B). \quad (6)$$

オリジナルの相反定理 [16] は時間反転対称性と平衡揺らぎの理論を用いて導かれているが、伝導体の散乱行列の対称性、つまり 1 粒子の Schrödinger 方程式の時間反転対称からも導ける。しかし、量子ドット・量子ビリヤード・AB リング干渉計などを用いた実験

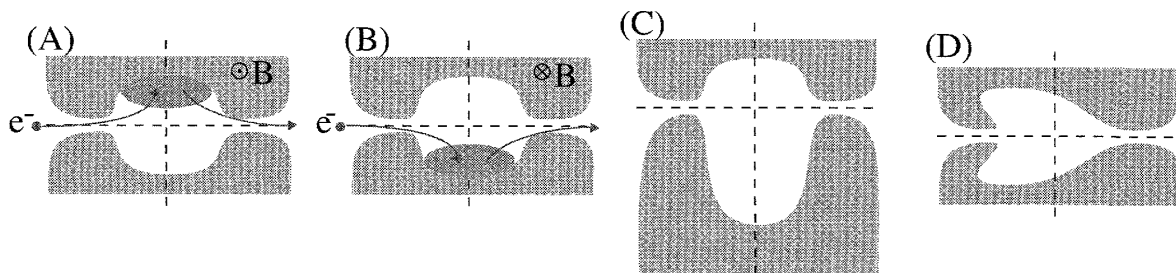


図4 対称／非対称な形の伝導体。(A,B):対称な形の伝導体。磁場の向きによって電子密度の分布が変わるが、相互作用の効き方は変わらない。(C):伝導方向左右に非対称な形の伝導体。磁場の向きにより電子密度の分布が変わるが、磁場が正の時と負の時で電子密度の分布が大きく変わるため、それに伴い相互作用の影響の効き方も変わる。(D):伝導方向前後に非対称な形の伝導体。電圧の向きによって通りやすさが変わるため、コンダクタンスは電圧について非対称な振る舞いを示す。

では、図に示すような非対称な伝導体の微分コンダクタンスが非線形領域で磁場に関して反対称の成分を含むようになり、Onsager の定理に破れが生じている。非線形伝導については、例えば量子ドットを用いた理論では、クーロン相互作用がある時にクロスオーバー磁束よりも大きな磁束をかけると破れが生じるとされている [18]。この破れについての一つの説明の仕方としては、磁場が正と負の場合とで密度が大きな箇所が異なり、その違いが相互作用を通して現れると理解するというものがある。

このように、電圧に関して非線形の領域では Onsager の相反定理は破れるのだが、同様の破れは電流と熱流に関する相反定理でも生じると考えられる。一方、電子相関やバイアスの効果により熱電効果を大きくし、熱電氣的な素子を作るのに役立てようという試みがメゾスコピック系に限らずなされている。特にメゾスコピック系は状態密度の粒子・正

孔非対称性が大きいと、熱電係数がバルクの系と比べると大きい。最近では非線形領域における熱電効果はミクロな冷凍機や熱的な整流系の実現に向けて注目されているが [7, 11, 12]、非線形領域において成り立つ式は数少ない [19]。そのため非線形領域における熱電効果を扱うのに便利な関係式について考えることは重要である。

1.1.2 統計力学における揺らぎの定理

■揺らぎの定理とは Onsager の相反定理 [16] は、揺動散逸定理 [20] と並んで線形応答理論における重要な定理である。しかし、これらは当然ながら線形応答領域に限られ、非線形非平衡の領域では成り立たない。統計力学の分野において非平衡における一般的な関係式を見つけるべく多くの研究が行われている。線形応答を超えた物理を調べる為に揺らぎが大きい系（例えば小さな系）が調べられており、例えば理論的には揺動散逸定理の破れをエネルギー論的に理解する試みなどがある [21, 22] が、現在では広いクラスの非平衡系で定量的な関係を与える奇妙な関係式として揺らぎの定理 [23–45] が広く認知されている。英語のレビューとして [42, 43] を、日本語の文献として [44, 45] を挙げる。

揺らぎの定理はエントロピー生成の分布に関する定理である。一般にある初期分布から系が時間発展した場合、適当に決めた測定時間後において物理量はある分布を持つことになる。例えば系が平衡状態になれば物理量は鋭い正規分布を持つ。非平衡状態には流れが存在することが重要であるが、流れに伴ってエントロピーが発生する。揺らぎの定理は測定時間 τ におけるエントロピー生成率 I_S が正である確率と負である確率を関係づけるもので、次のような簡単な形で書ける：

$$\left[\frac{P(I_S)}{P(-I_S)} \right] = e^{\tau I_S}. \quad (7)$$

この形の揺らぎの定理は特に遷移過程の揺らぎの定理 (Transient Fluctuation Theorem; TFT) と呼ばれる。これは初めは剪断のかかった粒子群のエネルギー一定という条件における数値計算によって発見された [23]。

■時間反転対称性／局所詳細釣り合い 揺らぎの定理は様々な非平衡のクラスで証明が行われている。揺らぎの定理が成立する条件として挙げられているのは運動方程式レベルのミクロな時間反転対称性 (microreversibility) や局所詳細釣り合い (detailed/modified fluctuation relation, local detailed balance) と呼ばれる性質である。数値的発見に用いられた粒子群の場合には、Nose-Hoover 熱浴を用いて位相体積の時間変化に着目することで、Liouville 方程式と時間反転対称性から示すことが出来る [24]。また、揺らぎの定理は反応拡散系や分子モーターのように離散化された特定の状態間を遷移する系や [25, 26]、

Langevin 方程式のような確率的時間発展に従う系においても成り立つことが示されている [27]。特に測定時間が無限大となるような定常状態においては、大偏差関数の性質としてまとめることが出来て、この場合の揺らぎの定理は定常状態の揺らぎの定理 (Steady State Fluctuation Theorem; SSFT) と呼ばれる [28–30]。

ここで思い出されるのは Loschmidt のパラドックスである。運動方程式にミクロな時間反転対称性がある場合、ある運動の軌道には必ず時間反転した反軌道が存在する。エントロピーが増える軌道の反軌道ではエントロピーが減るため、ミクロな力学とマクロな熱力学の間でどこからか非可逆性がもたらされていることになる。揺らぎの定理はマクロなスケールにおいてその時間反転対称性がどのように破れるかについて述べており、エントロピー生成の揺らぎについて (7) のような極めて非自明な関係を与えていると捉えることが出来る。揺らぎの定理によると、軌道について平均を取ったエントロピー生成率は正である。エントロピーが増える軌道の反軌道は有限の確率で起こり、その軌道においてエントロピーは減少するのだが、その確率は正軌道に比べて e^{-I_S} という小さな重みしか持たない。このため、揺らぎの定理は Loschmidt のパラドックスに一つの回答を与えていると見ることも出来る。

■揺らぎの定理から得られる情報 このように、揺らぎの定理はミクロなレベルでの時間反転対称性のみによっているため、非平衡物理における数少ない「厳密」な関係式となっている。揺らぎの定理は数値計算や後に述べるように実験によっても確認されており、統計力学の分野において一定の地位は得られている。しかし、揺らぎの定理はエントロピー生成率の確率分布に関する概念的・指導原理的な定理であり、非平衡状態の具体的な性質に対して直接の情報を与えるものではない。また、エントロピー生成率の形が複雑になると扱いも難しくなる。このため、揺らぎの定理から具体的な情報を引き出すことが重要になる。実際に揺らぎの定理から良く知られている関係式を導くことが出来る。例えばこの式を平衡近傍の線形応答領域に適応すると揺動散逸定理や Onsager の相反定理を再現する [31]。また一般にエントロピー生成率の平均値が正であるという意味での熱力学の第二法則や、非平衡仕事定理として知られる Jarzynski 等式、川崎の非線形応答関係も再現する [31–33]。揺らぎの定理を用いて未知の関係を見いだそうという試みとしては、非平衡定常状態のウェイトの導出の試みなどがある [46]。

■実験の例 揺らぎの定理は、RNA の折りたたみ、光学トラップ中のコロイド粒子、ダイヤモンドの欠陥などを用いた系において検証も行われている [47–51]。これらの小さな系を仕事をする機械と思うならば、エントロピー生成が負である過程は、外から仕事をしたのも関わらず機械がエントロピーを消費し、期待されるのとは逆の方向に動くことに

対応する。実際の測定ではエントロピー生成を外部からの仕事で評価し、(7) 式の対数をとったものをプロットしている。揺らぎの定理が成り立つ場合には直線のプロットが得られる。

■量子系の揺らぎの定理 上に挙げた揺らぎの定理は古典系に対するものであったが、量子系における揺らぎの定理も議論されている [35–42]。Kurchan[35] 以来、量子マスター方程式を用いたアプローチ [40, 42] や、Keldysh 形式及び完全計数統計を用いたアプローチが行われている [37–39]。重要なのはやはり時間反転対称性であるが、量子系における揺らぎの定理を議論する際には測定のプロトコルが重要になる。多くの研究では文献 [35] におけるように初期状態と終状態における 2 時間測定を行い、その 2 時間の測定値の差を用いて流れなどを定義するプロトコルを採用しており、その場合には揺らぎの定理が成り立つことが分かっている。一方、物理量を 1 回だけ測定するプロトコルでは、遷移過程や周期的に駆動される系における揺らぎの定理には補正項が生じる [41]。

ここでは特に文献 [37–39] の方法及びプロトコルに従う。文献 [37–39] では Keldysh 形式及び完全計数統計の手法を用いて、時間反転対称性が完全計数統計における流れの母関数に課す条件式から、定常状態の揺らぎの定理や輸送係数の間の拡張 Onsager 関係式と呼べる関係式を導いている。この拡張 Onsager 関係式は流れやその高次の相関の応答の間の関係式になっている。本研究ではこの文献 [38] における揺らぎの定理をレビューし、量子ドットの熱電効果への応用を議論する。

揺らぎの定理を直接メゾスコピック系で検証するのは難しいが、測定技術の向上によって高次の相関が測定出来るようになりつつある。例えば、電子の実時間測定を行うことで電流の高次の相関を得るような計数統計の実験がなされている [52–59]。そのため拡張 Onsager 関係式など、電流やノイズに限らず高次の相関まで含めた非線形領域の関係式の検証に近い将来可能になることが期待される。

1.2 研究の目的

Onsager の相反定理や揺動散逸定理は量子輸送の研究において指導原理として用いられている [60] が、これらは線形応答領域でしか適用できない。従って、電圧 V や温度差 ΔT が大きい非線形領域では Kelvin-Onsager 関係式 (5) も成り立たない。しかしメゾスコピック系では容易に非線形領域が実現出来、しかもその非線形における特性の利用も期待されている。よって非線形非平衡の量子輸送系における Kelvin-Onsager 関係式のような一般的な式が得られると大変有益である。

本研究ではこれらを踏まえ、非線形非平衡でも成り立つ量子系の揺らぎの定理 [38] をメゾスコピック系の熱電測定に応用し、非線形熱電効果の研究に有用な関係式を導くことを目的とする。これは揺らぎの定理から導かれる関係式の一つの使い方を示すという意味も持つ。また、手法としては、量子的なコヒーレンスを取り込むために完全計数統計の手法を用いた。

1.3 本論文の構成

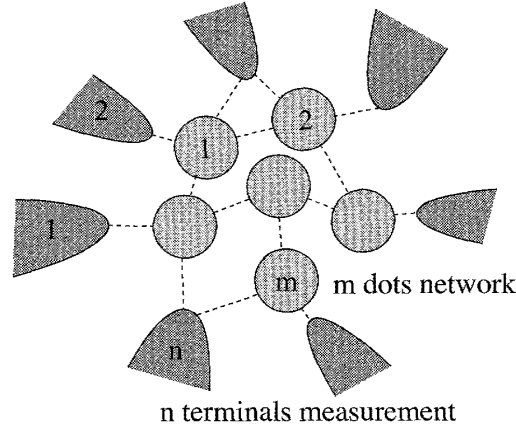
2 章ではまず本研究が扱う系の一般的な模型を紹介し、計算手法として必須となる Keldysh 形式（非平衡 Green 関数法）及び完全計数統計の手法についてレビューをする。完全計数統計は電流の高次のノイズなどを求めるのに便利な方法であり、特に、Keldysh 形式の生成汎関数の外源の量子成分が完全計数統計の計数場であることを見る。3 章では、まず量子系の揺らぎの定理 [38] をレビューする。ミクロな時間反転対称性から完全計数統計の特性関数の関係式を示し、これを用いて熱流と電流に関する量子版の揺らぎの定理と拡張 Onsager 関係式を示す。随時、具体例として二端子二重量子ドットの計算を示す。本研究の主たる結果として、この非線形輸送係数の間の関係式を用いて非線形の Peltier 効果について議論し、非線形領域の Peltier 係数が電流に関する輸送係数で書き直せることを示す。これは測定の難しい熱流に関する量を測定の易しい量へと書き換えていることに相当し、非線形熱電効果の研究で活用されることが期待される。4 章で本研究のまとめと今後の展望について述べる。

2 フォーマリズム

2.1 系

この節では、本研究が扱う系の一般的な形を紹介する。ここでは一般的な系として n 端子 m 重ドット系を考える。ドット部分では電子-電子の相互作用を含んでも良いとする。全体の Hamiltonian は電極、量子ドットとトンネル項からなる：

$$H = H_0 + H_T, \quad H_0 = \sum_{r=1}^n H_r + H_d, \quad (8)$$

図5 本研究で扱う n 端子 m 重の量子ドット系の模式図。

$$H_r = \sum_k \epsilon_{rk} a_{rk}^\dagger a_{rk}, \quad (9)$$

$$H_d = \sum_{i=1}^m \epsilon_i d_i^\dagger d_i + H_I, \quad (10)$$

$$H_T = \sum_{rki} t_{rki} d_i^\dagger a_{rk} + h.c.. \quad (11)$$

電極は H_r で表され、 a_{rk}^\dagger 、 a_{rk} は電極における波数 k の電子の生成消滅演算子である。量子ドットは H_d で表され、 d_i^\dagger 、 d_i は i で指定されるドットの固有状態の生成消滅演算子である。また、 H_I はドット部分における電子間のクーロン相互作用である。電極とドットの間のトンネル項は H_T で表される。磁場 B がかかっている場合には、 $t_{rki} = |t_{rki}| \exp i\phi_{rki}$ のようにトンネル項の位相としてそれを取り込む。ここで $\phi_{rki}(B)$ は磁場 B の奇関数である。

本研究では $\hbar = k_B = e = 1$ という単位系を用いる。初期状態の時間 $t = -\tau/2$ における密度行列は各部分の積 $\rho_0 = \rho_1 \rho_2 \dots \rho_n \rho_d$ で書けると仮定する ($s = 1 \dots n, d$) :

$$\rho_s = \frac{\exp[-\beta_s (H_s - \mu_s N_s)]}{\text{Tr} \exp[-\beta_s (H_s - \mu_s N_s)]}. \quad (12)$$

ここで ρ_s はトンネル項が無い場合の平衡状態における密度行列である。また $\beta_s = 1/T_s$ は逆温度、 μ_s は化学ポテンシャル、 N_s は数演算子である。電極とドットの間に流れる電

流と熱流の演算子は次のように定義される：

$$I_{cr} = \dot{N}_s = i[N_s, H_T] = - \sum_{i,k} i t_{rki} d_i^\dagger a_{rk} + h.c., \quad (13)$$

$$I_{hr} = \dot{H}_r = i[H_r, H_T] = - \sum_{i,k} i \epsilon_{rk} t_{rki} d_i^\dagger a_{rk} + h.c.. \quad (14)$$

2.2 Keldysh 形式

本節では非平衡状態を扱うことの出来る Keldysh 形式 [61] のレビューを行う。Keldysh 形式の特徴は閉時間経路と非平衡 Green 関数である。これらを導入することによって、非平衡状態においても平衡 Green 関数におけるのと同様の形式を展開し、ファインマンダイアグラムや既存の場の理論の手法を用いることが出来る。まず非平衡 Green 関数を導入し、実時間 Green 関数との関係を見た後、具体例を見てそれぞれの Green 関数がどのような意味を持つかを確認する。さらに経路積分及び生成汎関数の方法を導入し、外源の古典成分と量子成分の性質を見る。これは計算上の便利さだけでなく、完全計数統計における計数場の性質を理解するための準備も兼ねている。Keldysh 形式は完全計数統計以外にも確率的な運動をする系や反応拡散系、乱れた系やガラス系などにも用いることが出来る。短く教育的なレビューとして文献 [62, 63]、まとまった記述のある教科書として文献 [64–67] を挙げる。

2.2.1 非平衡 Green 関数の導入

以下では全ての生成生滅演算子は Fermi 統計に従うとする。平衡状態における Green 関数は

- Green 関数を計算することで重要な物理量に関する情報を得ることが出来る。
- 摂動計算を形式的に行うことが出来る。

という二つの理由により広く用いられている。その定義は Heisenberg 表示を用いて

$$G(t, t') = -i \langle T [\psi(t) \psi^\dagger(t')] \rangle \quad (15)$$

$$= -i \text{Tr} (\rho T [\psi(t) \psi^\dagger(t')]) \quad (16)$$

と書ける。ここで T は時間順序積演算子であり、時間の引数の大きな演算子が左側になるように交換を行う。また ψ^\dagger, ψ は電子の生成消滅演算子である。なお、簡単のため、 $(x(t), t)$ のような引数の組を t で代表して書いている。さらに ρ は統計演算子（密度行

列演算子) であり、平衡状態では $\rho = e^{-\beta H}/Z$ と書ける。ただし Z は分配関数であり、 $Z = \text{Tr}(e^{-\beta H})$ と書ける。 H は全系の Hamiltonian であり、対角化が可能な非摂動項 H_0 と摂動項 V を用いて $H = H_0 + V$ と書ける。これから非平衡における Green 関数を導入するが、その必要性を見るために、まずは特にゼロ温度における摂動計算がどのように行われるかを見る。

摂動計算を行うため、相互作用表示に移る。相互作用表示における演算子は

$$\psi_I(t) = U(t) \psi(0) = S(t, t') \psi_I(t') \quad (17)$$

$$U_I(t) = e^{iH_0 t} e^{-iHt} \quad (18)$$

$$S(t, t') = U(t) U^\dagger(t') = T \exp \left[-i \int_{t'}^t dt_1 V_I(t_1) \right] \quad (19)$$

の様に書ける。ここで $U(t)$ は時間発展演算子、 $S(t, t')$ は S 行列である。相互作用表示においてゼロ温度における Green 関数は次のように書き直す。今はゼロ温度を扱っているため、対角和は基底状態についてとれば良い。ここで $|\Phi_i\rangle_I$ は相互作用表示における相互作用無しの基底状態であり、 $|\Phi_f\rangle_I$ は相互作用表示における相互作用が印可された厳密な基底状態とすると、基底状態は相互作用表示における摂動項により断熱的に時間発展をするが、Gellmann-Low の定理により基底状態は基底状態へと移る。

$$|\Phi_f\rangle_I = S(0, -\infty) |\Phi_i\rangle_I \quad (20)$$

$${}_I \langle \Phi_f | = {}_I \langle \Phi_i | S(\infty, 0) \quad (21)$$

この際、時間発展に伴う非自明な位相因子が現れるが、分子分母で打ち消し合うため Green 関数は次のようになる：

$$G(t, t') = -i \frac{{}_I \langle \Phi_i | T [S(\infty, -\infty) \psi_I(t) \psi_I^\dagger(t')] | \Phi_i \rangle_I}{{}_I \langle \Phi_i | S(\infty, -\infty) | \Phi_i \rangle_I} \quad (22)$$

これは $t = \pm\infty$ の二つの状態で挟んだ量を計算していることに相当する。この形に書き直すことが出来ると、Wick の定理を用いてファインマンダイアグラムを書き下すことで形式的に摂動計算をすることが出来る。この形に書き直すことが出来たのは、平均をとるブラとケットの間で位相の違いはあるものの、同じ状態を取ることが重要である。

今考えたのはゼロ温度の平衡状態における場合だったが、有限温度や非平衡の場合には Gellmann-Low の定理を用いることが出来ないため、相互作用下で時間発展した後の $t = \infty$ における状態は基底状態だけではなく全ての状態の非自明な重ね合わせになってしまい、Wick の定理を使える形に変形することが出来ない。この問題を解決するため、松原形式では温度の効果を虚時間方向に対する時間発展として見ることで解決して

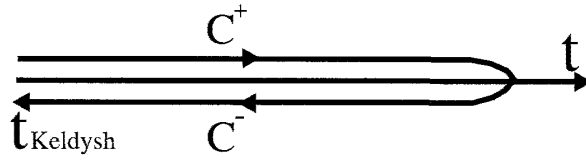


図6 Keldysh 経路

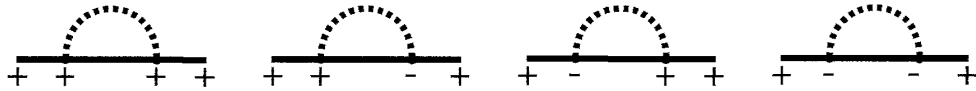


図7 Keldysh 形式におけるダイアグラムの例。因果 Green 関数 G^{++} について、2 体相互作用の 1 次のダイアグラムを書いた。節点についてそれぞれ可能な \pm を書きこみ、それらについて和を取る。

いた。しかし、松原形式であっても一般に時間依存する外場などの影響や非平衡状態を扱うことは出来ない。ここでは Keldysh 形式を用い、まずゼロ温度において図 6 に表すような経路（Keldysh 経路または閉時間と呼ぶ）を考える。Keldysh 形式のことを Schwinger-Keldysh 形式と呼ぶこともあるが、これは初めて閉時間経路のアイデアを提出したのが Schwinger であることによる。S 行列による時間発展を Keldysh 経路上における時間発展だと思ふことにより、平均を取る二つの状態は両方とも実時間 $t = -\infty$ における自明な状態となる。また、時間順序積 T を Keldysh 経路における経路順序積 T_c に置き換えることにより Green 関数は

$$G(t, t') = -i \frac{{}_I \langle \Phi_I | T_c \left[S(-\infty_f, -\infty_i) \psi_I(t) \psi_I^\dagger(t') \right] | \Phi_I \rangle_I}{{}_I \langle \Phi_I | S(-\infty_f, -\infty_i) | \Phi_I \rangle_I} \quad (23)$$

という形に拡張することが出来る。これを非平衡 Green 関数、または Keldysh Green 関数と呼ぶ。ここに現れた時間の引数 $t, t', -\infty_i, -\infty_f$ は全て Keldysh 経路上の閉時間である。このように定義することにより、Wick の定理を使えるようになるため、非平衡状態においても文献 [68] などと同様にしてダイアグラムの手法を用いることが出来る。違いとしては、それぞれの節点においてその点が Keldysh 経路の行きと帰りのどちらの経路から来ているかを区別し、それらについて和を取るという点である（図 7）。

少し脱線するが、「非平衡 Green 関数を計算すれば非平衡のことは全て分かった」という誤解が、時折ある。これは間違いであり、「非平衡状態においても Keldysh 形式を用いれば、平衡状態の場合と同様に場の理論の手法が使える」が正しい。特に分からないの

は、非平衡状態における統計的重みの具体的な形である。平衡状態においては統計的な重みは $\rho = e^{-\beta H}/Z$ とボルツマン因子の形で書けるが、非平衡状態においてはどのような重みをしているのかは分かっていない。つまり、非平衡 Green 関数と言えども、初期状態の計算に非平衡状態の統計的重みが必要となる場合には（現時点では）計算が出来ないことになる。

話を元に戻す。ゼロ温度の場合と同様に、有限温度における非平衡 Green 関数は次のように定義出来る：

$$G(t, t') = -i \langle T_c [\psi(t) \psi^\dagger(t')] \rangle \quad (24)$$

$$= -i \text{Tr}(\rho T_c [\psi(t) \psi^\dagger(t')]) \quad (25)$$

有限温度かつ平衡状態において Wick 回転をすることで松原 Green 関数を定義できたが、これは虚時間 $\tau = 0$ から $\tau = \beta$ 、つまり複素時間において $t = 0$ から $t = -i\beta$ までの経路を考えることと同様であった。これと同様に初期状態の密度行列がボルツマン因子

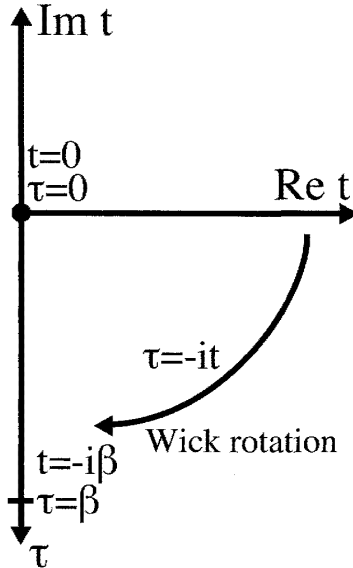


図8 Wick 回転

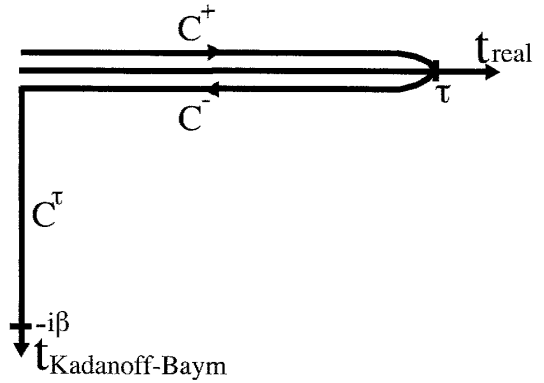


図9 Kadanoff-Baym 経路

$\rho = e^{-\beta H}/Z$ である場合には経路を図のように変形して Green 関数を

$$G(t, t') = -i \frac{I \langle T_c [S(-\infty_f - i\beta, -\infty_i) \psi(t) \psi^\dagger(t')] \rangle_I}{I \langle T_c [S(-\infty_f - i\beta, -\infty_i)] \rangle_I} \quad (26)$$

のように定義し直すことで有限温度における計算をすることが出来る。ここで $I \langle \dots \rangle_I$ は H_0 についての統計平均であり、この経路のことを Kadanoff-Baym 経路と呼ぶ。Keldysh

経路と Kadanoff-Baym 経路が出て来たが、経路積分は経路の選び方に依存せずに同様に計算を行うことが出来るため、 H_0 の部分が 2 次形式ならばこの計算は容易に実行出来る。また、Keldysh 形式では初期状態の密度行列は必ずしも平衡状態では無いため、Kadanoff-Baym 経路は常に必要な経路というわけではない。初期条件において非平衡における状態の統計的重みが分からないとマクロな自由度は計算が不可能であるが、ミクロな自由度については平衡状態でなくても計算が容易である。例えば、電極と繋がった量子ドット（共鳴準位として扱える）のような系においては、量子ドットの初期状態は平衡状態でなくて準位に電子がいる／いないのような形で指定しても良い。

なお、ここでは主に Keldysh 経路の長さが無限大の場合を意識して書いていたが、遷移過程においても同様に扱うことが出来る。初期実時間及び終実時間を適当に $t_i, t_f = t_i + \tau$ のように置けばよい。大きな違いは、有限時間の遷移過程では初期状態の詳細に依存した非平衡状態を考えなければならないという点である。 $\tau \rightarrow \infty$ において実現される非平衡状態は初期状態にはよらないので、相互作用は実軸に沿った二本のブランチにおいてのみ考えれば良い。一方、有限時間の遷移過程では初期状態に依存した時間発展を見るため、実時間軸と虚時間軸の間の相互作用を一般には考える必要が出てくる。初期状態の Hamiltonian が Wick の定理を用いることが出来るようなものの場合には虚時間の自由度については積分してしまった有効問題を考えれば良いが、相互作用の含まれた平衡状態を初期状態として時間依存する Hamiltonian の元での時間発展を見るような場合には注意が必要である。表に摂動項の種類及び τ が有限/無限かによって実現される非平衡状態を示す。原理的にはいかなる非平衡状態も扱えるはずだが、平衡状態において自由電子系からはじめて超伝導を議論するのに無理があったように、非平衡的な摂動項が摂動的に扱うには大きすぎる場合には実際上の問題として扱えないと考えられる。この場合には初期状態を平衡状態に選ぶことをやめて、目的とする非平衡状態に近い適当な初期状態を自分で選ぶ必要があると思われる。

表 1 Keldysh 形式で実現される非平衡状態

	$H = H_0 + H_{I_1}$	$H = H_0 + H_{I_1} + H_{I_2}(t)$
τ 有限 (遷移過程)	定常状態への緩和過程	非平衡状態への緩和過程
τ 無限 (「定常」状態)	定常状態	一般に非平衡状態

2.2.2 実時間 Green 関数との関係

非平衡 Green 関数は閉時間の関数として求まるが、このままでは実際の物理量との対応が見えない。そのため、計算後に実閉時間を実単時間軸に射影する。この時、 t, t' が二つの経路のどちらかにあるかによって、4通りの Green 関数 $G^{\pm\pm}$ が自然と導入される：

$$G^{++}(t, t') = -i \langle T [\psi(t) \psi^\dagger(t')] \rangle \quad (27)$$

$$G^{--}(t, t') = -i \langle \tilde{T} [\psi(t) \psi^\dagger(t')] \rangle \quad (28)$$

$$G^{+-}(t, t') = +i \langle \psi^\dagger(t') \psi(t) \rangle \quad (29)$$

$$G^{-+}(t, t') = -i \langle \psi(t) \psi^\dagger(t') \rangle \quad (30)$$

G^{++} は G または G^c とも表記され、因果 Green 関数と呼ばれる。 G^{--} は \tilde{G} または \tilde{G}^c とも表記され、反因果 Green 関数と呼ばれる。 \tilde{T} は反時間順序演算子であり、実時間が大きいものが右になるように並び替える演算子である。 G^{+-} は $G^<$ とも表記され、lesser Green 関数と呼ばれる。 G^{-+} は $G^>$ とも表記され、greater Green 関数と呼ばれる。greater Green 関数と lesser Green 関数は電子の「存在閉時間」 $t - t'$ が正／負の時に greater / lesser となると覚えると良い。非平衡 Green 関数についてもファインマンダイアグラムや Dyson 方程式の方法を用いることが出来るが、実時間軸に射影してから扱う場合（単時間表示）には便利の為に Green 関数を行列の形に書くことがある：

$$\hat{G}(t, t') = \begin{bmatrix} G^{++}(t, t') & G^{+-}(t, t') \\ G^{-+}(t, t') & G^{--}(t, t') \end{bmatrix}. \quad (31)$$

この 2×2 の空間を Keldysh 空間と呼ぶ。単時間表示であることを表すためにハットを付けて表示した。このように、非平衡 Green 関数を扱う際にはその成分が増えてしまい計算が煩雑になることがデメリットであるが、後で示すように生成汎関数を用いればこの問題は緩和される。先ほどの4つの Green 関数は、その定義から分かるように独立ではない。Keldysh 空間における Pauli 行列 τ_0, \dots, τ_3 を定義すると、 $Q \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(\tau_0 - i\tau_2)$ を用いて Green 関数を三角行列に変形出来て、

$$\tilde{G} = Q \hat{G} Q^\dagger = \begin{bmatrix} 0 & G^A(t, t') \\ G^R(t, t') & G^K(t, t') \end{bmatrix} \quad (32)$$

となる。この表示を物理表示と呼び、チルダを付けて区別することにする。また、ここで行った行列の回転を Keldysh 回転と呼ぶ。ここに表れた3つの Green 関数の定義を確認

すると、

$$G^R(t, t') = -i\theta(t - t') \langle \{ \psi^\dagger(t'), \psi(t) \} \rangle \quad (33)$$

$$G^A(t, t') = +i\theta(t' - t) \langle \{ \psi^\dagger(t'), \psi(t) \} \rangle \quad (34)$$

$$G^K(t, t') = -i \langle \{ \psi(t), \psi^\dagger(t') \} \rangle. \quad (35)$$

ここで G^R / G^A は平衡状態の Green 関数論で導入されるのと同様の遅延／先進 Green 関数である。 G^K は F と表記され、(少しややこしいが) Keldysh Green 関数ないしは Keldysh 成分と呼ばれる。7 つの Green 関数の間の関係を明示的に書くと、

$$G^R(t, t') = G^{-+}(t, t') - G^{--}(t, t') = G^{++}(t, t') - G^{+-}(t, t') \quad (36)$$

$$G^A(t, t') = G^{+-}(t, t') - G^{--}(t, t') = G^{++}(t, t') - G^{-+}(t, t') \quad (37)$$

$$G^K(t, t') = G^{-+}(t, t') + G^{+-}(t, t') = G^{++}(t, t') + G^{--}(t, t') \quad (38)$$

となる。実際の計算では閉時間の関数として Green 関数を計算してから単実時間軸へと射影を行ったり、greater/lesser Green 関数 G^{-+}, G^{+-} が求まってからスペクトル関数を求めたりする。この時に有用な Langreth の関係式と揺動散逸定理を付録付録 A に書いた。

ここでは Green 関数に \pm をつけて定義をした。定義の仕方には流儀があり、ここで導入したように \pm の符号を C_+, C_- に対応してつけるものと、その逆を用いるものがある。後者の流儀を用いている文献としては [64, 67] などがある。前者の流儀は、後で導入するように経路積分で Keldysh 形式を扱う際に、経路積分の時間の微分の符号と対応しているという点で自然であり、後者の流儀は、ファインマンダイアグラムを書く際の符号を考える際に、一体ポテンシャルの前に付く符号と対応しているという点で自然である。

2.2.3 例 :理想量子気体

7 つの Green 関数の意味合いを見るために、例として $H_0 = \sum_k \epsilon_k \psi_k^\dagger \psi_k$ で表される理想量子気体を考える。系が相互作用を持たない粒子からなり、定常的で一様な状態にあるとする。平均を取るアンサンブルとしてグランドカノニカル分布を用いると、状態は運動量

空間における分布 $f_k(\omega)$ で指定出来て、7 つの Green 関数は次のように書ける：

$$G^{++}(k, \omega) = \frac{1 - f_k(\epsilon_k - \mu)}{\omega - (\epsilon_k - \mu) + i\eta} + \frac{f_k(\epsilon_k - \mu)}{\omega - (\epsilon_k - \mu) - i\eta} \quad (39)$$

$$G^{--}(k, \omega) = -\frac{1 - f_k(\epsilon_k - \mu)}{\omega - (\epsilon_k - \mu) - i\eta} - \frac{f_k(\epsilon_k - \mu)}{\omega - (\epsilon_k - \mu) + i\eta} \quad (40)$$

$$G^{+-}(k, \omega) = +2\pi i f_k(\epsilon_k - \mu) \delta(\omega - (\epsilon_k - \mu)) \quad (41)$$

$$G^{-+}(k, \omega) = -2\pi i (1 - f_k(\epsilon_k - \mu)) \delta(\omega - (\epsilon_k - \mu)) \quad (42)$$

$$G^R(k, \omega) = \frac{1}{\omega - (\epsilon_k - \mu) + i\eta} \quad (43)$$

$$G^A(k, \omega) = \frac{1}{\omega - (\epsilon_k - \mu) - i\eta} \quad (44)$$

$$G^K(k, \omega) = -2\pi i (1 - 2f_k(\epsilon_k - \mu)) \delta(\omega - (\epsilon_k - \mu)) \quad (45)$$

平衡状態を考える場合、 $f_k(\omega)$ は Fermi 分布になる。greater/lesser Green 関数 G^{--}, G^{+-} は実際の物理量に対応していて、それぞれ正孔／粒子的な振る舞いを記述する。Keldysh 成分 G^K は物理表示において実際の物理量に対応する静的な情報を一手に担っている。遅延／先進 Green 関数 G^R, G^A は平衡状態におけるものと同様に、解析的に良い構造を持ち、分散関係や緩和といった動的な性質を記述する。因果／反因果 Green 関数 G^{++}, G^{-+} はそれ自体からは物理的な情報を読み取りにくい。形式的な便利のための関数である。

2.2.4 例：量子ドットの電流

平衡状態におけるのと同様に Dyson 方程式を導くことが出来る。Dyson 方程式の積分形に Langreth の定理を用いて、lesser Green 関数 G^{+-} に関する自由度に着目すると、複数の共鳴順位からなるような量子ドットに二つの電極がついている場合の、有限バイアス下における電流の式を求めることが出来る [69]。この方法は運動方程式の方法として引用される。付録付録 B に計算過程をレビューした。電流についての結果を引用すると、電極に関して対称化された電流を J 、量子ドットの自由度の大きさの Green 関数を \vec{G} 、左右の電極の Fermi 分布を $f_{L,R}$ 、量子ドットの準位の左右の電極由来の広がり幅の行列を $\vec{\Gamma}^{L,R}$ として、

$$J = \frac{ie}{2\hbar} \int \frac{d\omega}{2\pi} \text{Tr} \left\{ \left[\Gamma^L(\omega) - \Gamma^R(\omega) \right] G^<(\omega) + \left[f_L(\omega) \Gamma^L(\omega) - f_R(\omega) \Gamma^R(\omega) \right] \left[G^R(\omega) - G^A(\omega) \right] \right\} \quad (46)$$

となり、Landauer 型の電流が得られていることが分かる。

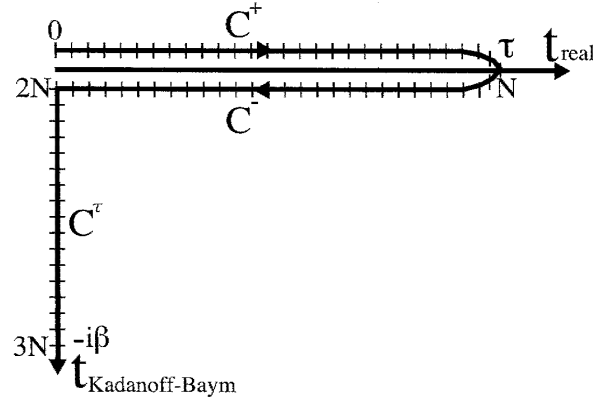


図 10 離散化された Kadanoff-Baym 経路

2.2.5 経路積分表示による生成汎関数の方法

実際の計算を行うにあたって、文献 [70–72] などにあるように外源を導入して Green 関数の生成汎関数を用いた方が見通しが良い。ここでは例として自由フェルミオンに対して計算をし、外源の古典成分と量子成分について議論する。外源の量子成分の性質が、完全計数統計の仕組みを理解するために重要となる。

■自由フェルミオンの生成汎関数の計算

$$H_0 = \epsilon_d d^\dagger d \quad (47)$$

のような自由フェルミオンを考える。この系の生成汎関数は、外源 J, J^* を用いて次のように書ける。

$$Z[J^*, J] = \frac{1}{\text{Tr}\{\rho_0\}} \left\langle T_c \exp \left(i \int_K dt \{ d^\dagger(t) J(t) + J^*(t) d(t) \} \right) \right\rangle \quad (48)$$

分母の $\text{Tr}\{\rho_0\}$ は規格化因子である。この計算を Kadanoff-Baym 経路上で行うため、経路を $3N$ 個に離散化し、グラスマン数 ϕ で書かれた完全系 [70, 73]

$$|\phi_i\rangle = e^{\phi_i d^\dagger} |0\rangle, \quad (49)$$

$$\int d\phi_i^* d\phi_i e^{-\phi_i^* \phi_i} |\phi_i\rangle \langle \phi_i^*| = 1 \quad (50)$$

を挟んで計算を行うと

$$Z[J^*, J] = \frac{1}{\text{Tr}\{\rho_0\}} \left(\prod_{i=1}^{3N} \int d\phi_i^* d\phi_i \right) \times \exp \left(i \sum_{j=1}^{3N} \Delta_j \left\{ i\phi_j^* \frac{\phi_j - \phi_{j-1}}{\Delta_j} - \epsilon_d \phi_j^* \phi_{j-1} + \phi_j^* J_j + J_{j-1}^* \phi_{j-1} \right\} \right) \quad (51)$$

となる。ただし、

$$\Delta_j = \begin{cases} +\tau/N, & \text{on } C^+ \\ -\tau/N, & \text{on } C^- \\ -i\beta/N, & \text{on } C^\tau \end{cases} \quad (52)$$

であり、外源は虚時間経路上では 0 である。これを連続表示で書くと、

$$Z[J^*, J] = \frac{1}{\text{Tr}\{\rho_0\}} \int D[\phi^*, \phi] \exp(iS[J^*, J]), \quad (53)$$

$$S[J^*, J] = \int_K dt \left\{ \phi^*(t) (i\partial_t - \epsilon_d) \phi(t) + \phi^*(t) J(t) + \phi(t) J^*(t) \right\} \quad (54)$$

となる。離散表示に戻り、この指数の外源以外の Green 関数の逆数部分を

$$\exp[-\phi_j^* M_{jj'} \phi_{j'}'] \quad (55)$$

$$M_{jj'} = \begin{cases} 1, & (j = j') \\ a_{j'}, & (j = j' + 1) \\ a_{3N}, & (j = 1, j' = 3N) \\ 0, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (56)$$

と置く。ここで $a_j \equiv -1 + i\epsilon_d \Delta_j$ である。2 次形式なので積分をすることが出来て、経路積分を実行すると

$$\int D[\phi^*, \phi] \exp[-\phi_i^* M_{ij} \phi_j + \phi_i^* J_i + J_i^* \phi_i] = \det M \exp[J_i^* M_{ij}^{-1} J_j] \quad (57)$$

となる。ここで、

$$\det M = 1 + e^{-\beta\epsilon_d} \quad (58)$$

$$M_{ij}^{-1} = (-1)^{i+j} \frac{\det(\tilde{M}_{ji})}{\det M} \quad (59)$$

$$= \frac{1}{\det M} \begin{cases} \prod_{m=j}^{i-1} a_m, & j < i \\ 1, & j = i \\ e^{-\epsilon_d \beta + i\epsilon_d(t-t')}, & j > i \end{cases} \quad (60)$$

であり、繰り返し出て来た添字について和をとる縮約記法を用いた。 \tilde{M}_{ji} は余因子である。閉時間経路上の時刻を実時間軸に射影すると

$$M^{-1} = ig(t, t') = \begin{cases} -if^{-}(\epsilon_d) e^{-i\epsilon(\bar{t}-\bar{t}')} , & t \geq t' \\ +if^{+}(\epsilon_d) e^{-i\epsilon(\bar{t}-\bar{t}')} , & t < t' \end{cases} \quad (61)$$

となり、Green 関数が得られることが分かる。ここで

$$f^{\pm}(\omega) = 1/(1 + e^{\pm\beta\omega}) \quad (62)$$

は Fermi 分布/ホール分布である。まとめると、

$$Z[J^*, J] = \frac{1}{Z_0} \exp \left(\int_K dt dt' (iJ^*(t)) (ig(t, t')) (iJ(t)) \right). \quad (63)$$

ここで $Z_0 \equiv \text{Tr} \{\rho_0\}$ である。 $g(t, t')$ は粒子の Keldysh Green 関数であり、式 (61) で与えられる。結局、得られた式は連続表示で $(g)^{-1} = i\partial_t - \epsilon_d$ として、Gauss 積分の公式で $M_{ij} = (ig)^{-1}$ としているのと同じである。

■共鳴準位モデルの有効作用 全く同様にして、相互作用の存在しない共鳴準位モデルの有効作用を計算できる。電極と共鳴準位からなるモデルの作用は、電極・ドット内の電子に対応するグラスマン数をそれぞれ a_{rk}, a_{rk}^*, d, d^* ($r = L, R$) と置くと、

$$S[a_{rk}, a_{rk}^*, d, d^*] = \int_K dt \left[\sum_{r,k} a_{rk}^*(t) (i\partial_t - \epsilon_{rk}) a_{rk}(t) + d^*(t) (i\partial_t - \epsilon_d) d(t) + \sum_{rk} (V_{rk} a_{rk}^*(t) d(t) + h.c.) \right] \quad (64)$$

であり、電極の電子のグラスマン数をドットの電子の外源と思えば Kadanoff-Baym 経路上で電極の電子についての積分が簡単に出来て、

$$S_{eff}[d, d^*] = \int_K dt d^*(t) (i\partial_t - \epsilon_d) d(t) - \int_K dt dt' d^*(t) \Sigma_d(t, t') d(t) \quad (65)$$

という有効作用が得られる。ここで、 Σ_d は共鳴準位の自己エネルギーであり、 $\Sigma_d = \sum_{rk} |V_{rk}|^2 g_{rk}(t, t')$ と書ける。ただし $g_{rk}(t, t')$ は電極 r の波数 k の電子の Green 関数である。

■外源の古典・量子成分 例として自由フェルミオンに戻り、外源の性質について議論する。閉時間を実時間軸に射影すると、Keldysh 空間における生成汎関数は

$$-i \ln Z[J^*, J] = \frac{1}{Z_0} \int_{-\infty}^{\infty} dt dt' [J^{+*}(t), J^-(t)] \tau_3 \hat{G}(t, t') \tau_3 \begin{bmatrix} J^+(t') \\ J^-(t') \end{bmatrix} \quad (66)$$

となる。 J^{+*}, J^{\pm} は外源を実時間軸に射影したものであり、これを変分を行えば $G^{\pm\pm}(t, t')$ などの Green 関数を得ることが出来る。ここでは、外源の古典成分（重心成分）と量子成分（相対成分）を導入し、これらについて変分した結果が $G^{\pm\pm}(t, t')$ よりも意味の分かりやすい相関関数や応答関数を返すことを見る。外源の古典・量子成分はそれぞれ

$$J_c(t) = \frac{J^+(t) + J^-(t)}{2} \quad (67)$$

$$J_q(t) = \frac{J^+(t) - J^-(t)}{2} \quad (68)$$

として定義される。 $J^+(t) = J^-(t)$ ならば量子成分は $J_q = 0$ となることに注意する。これを用いると外源項は

$$\int_K a^*(t) J(t) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \{a_c^*(t) J_q(t) + a_q^*(t) J_c(t)\} \quad (69)$$

と、量子成分と古典成分が振じれた形で書き直せる。式 (66) を量子成分と古典成分を用いて書き直すと、

$$-i \ln Z = \frac{1}{Z_0} \int_{-\infty}^{\infty} dt dt' \left(J_q^*(t) G^R(t, t') J_c(t') + J_c^*(t) G^A(t, t') J_q(t') + \frac{1}{2} J_q^*(t) G^K(t, t') J_q(t') \right). \quad (70)$$

よって、外源について二回変分をした後に外源を 0 と置いたものは、

$$-i \frac{\delta^2 \ln Z}{\delta J_q^*(t) \delta J_q(t')} \Big|_{J=0} = \frac{1}{2} G^K(t, t'), \quad (71)$$

$$-i \frac{\delta^2 \ln Z}{\delta J_q^*(t) \delta J_c(t')} \Big|_{J=0} = G^R(t, t'), \quad (72)$$

$$-i \frac{\delta^2 \ln Z}{\delta J_c^*(t) \delta J_q(t')} \Big|_{J=0} = G^A(t, t'), \quad (73)$$

$$-i \frac{\delta^2 \ln Z}{\delta J_c^*(t) \delta J_c(t')} \Big|_{J=0} = 0 \quad (74)$$

となる。もし外源の量子成分が 0 で無い場合には Keldysh 経路の上下の経路からの寄与は打ち消されずに生き残り、これが規格化を破るという形で現れる。外源の量子成分が 0 ならば外源の上下の経路の成分は等しくなるため、Keldysh 経路の上下の経路からの寄与は打ち消され、 $Z[J_q = 0] = 1$ と規格化された値が得られる。この時、 $\ln Z = 0$ となるため (74) 式を得る。最後の式が 0 となること及び残りの 3 つの式で応答関数や相関関数が得られることを、測定及び因果律とのアナロジーで理解することが出来る。古典成分での変分を物理量を変化させた時の揺動に対応付け、量子成分での変分を量子的な測定に対応付けると、式 (74) は揺動が有っても測定がなければ何も得られないことに対応している。式 (72),(73) は揺動があった時の応答が遅延・先進 Green 関数として表されることを示しており、測定が揺動の後 (前) なら遅延 (先進) Green 関数が得られる。式 (71) はある二時間の間の測定値の相関が Keldysh Green 関数として表されることを示している。

外源の古典・量子成分の意味についてより詳しく見るため、文献 [62] にならって

$$S_{source}[V] = \frac{1}{2} \int_K dt V(t) \phi^*(t) \phi(t) \quad (75)$$

のように密度と結合した外源を考える。 J, J^* の場合と同様に古典成分と量子成分を導入すると、

$$S_{source}[V] = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \left(V^+(t) \phi^{++}(t) \phi^+(t) - V^-(t) \phi^{--}(t) \phi^-(t) \right) \quad (76)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[V_c (\phi_c^* \phi_q + \phi_q^* \phi_c) + V_q (\phi_c^* \phi_c + \phi_q^* \phi_q) \right] \quad (77)$$

のようになり、外源の量子成分 V_q が密度である $\phi_c^* \phi_c$ に結合していることが分かる。生成関数を

$$Z[V_c, V_q] = \langle e^{iS_{source}} \rangle_I \quad (78)$$

と定義する。ただし、 $\langle \rangle_I$ は外源項以外を非摂動項として扱った相互作用表示であることを示す。これは $V_q = 0$ の時は $Z[V_c, V_q = 0] = 1$ となり規格化条件を満たすが、 $V_q \neq 0$ の時は満たさないことを注意する。この生成関数を用いて、

$$n(t; V_c) = -i \frac{\delta}{\delta V_q(t)} Z[V_c, V_q] \Big|_{V_q=0} \quad (79)$$

のように物理量を生成することが出来る。この V_c 依存性は実際に作用として $V_c \phi \phi$ のような項が入った時の依存性であり、 S_{source} を完全に外源と思うのならば、 $V_c \rightarrow 0$ とする必要がある。このように、外源の量子成分による変分によって物理量の古典成分、つまり

物理量そのものが生成される。この性質を用いて、完全計数統計の手法を Keldysh 形式でまとめることが出来ることを次の節で示す。

2.3 完全計数統計

完全計数統計は光学における光子計数統計を基にし、物理量の高次の相関まで全て求める手法である。メゾスコピック系の完全計数統計は Levitov と Lesovik によって導入された [74–76]。はじめはスピン検流計によるアナロジーを用いて計数場と呼ばれる補助場が導入されたが、これは Keldysh 形式における外源の量子成分の性質を用いてまとめることが出来る。今では単電子トランジスタや chaotic cavity を含む量子ドット系や量子ポイントコンタクト [77–83]、Josephson 接合を含む超伝導や常伝導の接合系 [84–86]、回路模型 [87]、Mach-Zehnder 干渉系を含む朝永 Luttinger 液体及び量子ホール系 [88–91]、分子を用いた伝導系 [92] などの様々な系に応用され、電荷や電流の分布が求められている。また、手法としては Green 関数及び経路積分を用いたものが多いが、散乱行列 [74, 93]、マスター方程式 [78, 94–96]、波束 [97] を用いた枠組みも扱われている。レビューとして文献 [98] を挙げる。

物理的には、ショットノイズをはじめとした電流の二次以上のキュムラントは電子の輸送メカニズムを調べるのに有用であり [99]、例えば分数量子ホール系 (実効電荷が分数電荷) [100–102] や Multiple Andreev Reflection (実効電荷が $e(1 + 2\Delta/|eV|)$) を起こす接合系 [86, 103–105] の実効電荷を調べるのに用いられる。また、イントロダクションで述べたように相互作用の効果が興味を持たれており、Coulomb Blockade 及びその逆極限や近藤効果を起こす系における電流やスピン流のノイズの性質も調べられている [78, 81, 83]。

2.3.1 一般的な枠組み

まず、主に文献 [74, 75, 98] に従い、完全計数統計が扱う一般的な枠組みについて説明する。ある物理量 q を考え、ある測定時間 τ の測定を何度も繰り返した時に得られる物理量の確率分布を p_q とする。この時、完全計数統計の枠組みでは p_q の Fourier 変換である特性関数 $Z(\chi)$ を求めることが出来る：

$$Z(\chi) = \sum e^{iq\chi} p_q. \quad (80)$$

ここに現れる場 χ を計数場と呼ぶ。特性関数 $Z(\chi)$ は $Z(0) = 1$ のように規格化されているものとする。特性関数が求まると、その対数が物理量のキュムラント生成関数となる：

$$\ln Z(\chi) = \sum_{k=1}^{\infty} C_k \frac{(i\chi)^k}{k!}, \quad (81)$$

$$C_k \equiv \frac{\partial^k \ln Z}{\partial (i\chi)^k} = \langle\langle \delta q^k \rangle\rangle. \quad (82)$$

$k=1, 2$ のキュムラントは平均 (mean) や分散 (variance) であり、測定時間が十分長い平衡状態の分布は正規分布になるためこの二つの量を調べれば十分である。測定時間が小さな場合や非平衡の場合においては正規分布からのずれが問題となり、 $k \geq 3$ のキュムラントが調べられる。例えば、 $k=3$ のキュムラントは分布の非対称性を特徴付ける量であり、歪度 (skewness) と呼ばれ、 $k=4$ のキュムラントは分布の尖り具合を特徴付ける量であり、尖度 (sharpness) と呼ばれる (図 11)。

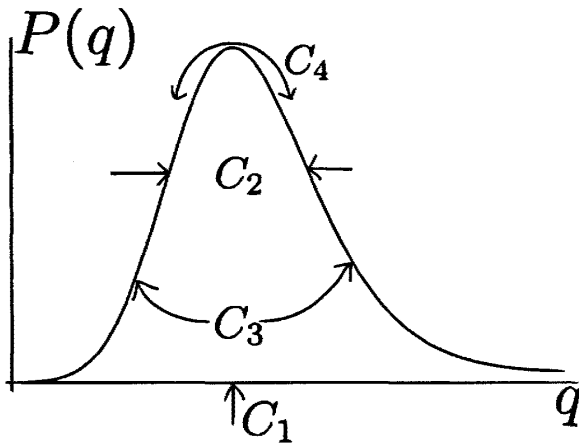


図 11 分布とキュムラント

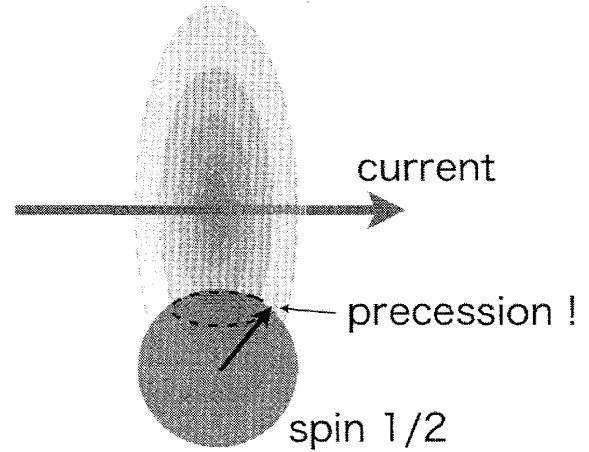


図 12 スピン 1/2 検流計

2.3.2 スピン検流計

測定時間 τ の間にある場所を透過する電子数を測定する方法を考える。電流は透過する電子数 $n(t)$ を用いて $\int_0^\tau (-e) n(t) dt$ のように書くことが出来るが、各時刻における電子数を測定し続けてはコヒーレンスが失われてしまう。そのため間接的に電流を測定する方法が必要になる。Levitov と Lesovik[74, 75] の思考実験では、局在スピン 1/2 を電子が透過するトンネル障壁の傍に置く (図 12)。電子が透過すると流れた電流に応じた磁場が

発生する。電流が発生した磁場により、スピンはラーモア歳差運動を行う。このスピンの

$$H(t) = \frac{1}{2} \lambda \sigma_3 I(t) \quad (83)$$

のような Hamiltonian に従って運動する場合、歳差運動の角度は流れた電流に比例する：

$$\theta(t) = \lambda \int_0^t dt I(t). \quad (84)$$

この歳差の角度を測ることにより電流の平均値を測ることが出来る。この時、 λ の具体的な大きさに制限が無いことに注意しよう。

上の式のようなスピンの運動をミクロな Hamiltonian から導く。電子の運動はベクトルポテンシャルを $\vec{a}(r)$ として $H(\vec{q}, \vec{p} - \vec{a}\sigma_3)$ のような Hamiltonian に従う。スピンの昇降演算子の成分の Heisenberg 方程式 $i\dot{\sigma}_{\pm} = [\sigma_{\pm}, H]$ を具体的に書くと、

$$i\dot{\sigma}_+ = \sigma_+ P_{\downarrow} H(\vec{q}, \vec{p} + \vec{a}\sigma_3) - H(\vec{q}, \vec{p} - \vec{a}\sigma_3) P_{\uparrow} \sigma_+, \quad (85)$$

$$i\dot{\sigma}_- = \sigma_- P_{\uparrow} H(\vec{q}, \vec{p} - \vec{a}\sigma_3) - H(\vec{q}, \vec{p} + \vec{a}\sigma_3) P_{\downarrow} \sigma_- \quad (86)$$

となる。 $P_{\uparrow, \downarrow} = \frac{1}{2}(1 \pm \sigma_3)$ はスピン空間の射影演算子である。ある測定時間 τ の間だけスピンと電子との結合が存在するとして、この運動方程式を積分すると、

$$\langle \sigma_+(\tau) \rangle = \left\langle e^{iH(\vec{q}, \vec{p} - \vec{a}\sigma_3)\tau} e^{-iH(\vec{q}, \vec{p} + \vec{a}\sigma_3)\tau} \right\rangle_{electron} \langle \sigma_+(0) \rangle_{spin} \quad (87)$$

となる。電子とスピンの項が分かれたが、電子について平均をとる部分を $Z(\lambda)$ と置くことにしよう。ここで、電流とスピンの相互作用の大きさは十分小さいと仮定し、 $H(\vec{q}, \vec{p} \pm \vec{a}\sigma_3) = H(\vec{q}, \vec{p}) \pm \vec{a}\vec{j}$ と展開する。 \vec{j} は電流密度である。これを先ほどの式に代入すると、

$$Z(\lambda) = \left\langle T \exp \left(i \int_{\tau}^0 \int d\vec{r} dt \vec{a} \vec{j}(t) \right) T \exp \left(-i \int_0^{\tau} \int d\vec{r} dt \vec{a} \vec{j}(t) \right) \right\rangle_{electron} \quad (88)$$

$$= \left\langle e^{i\theta(\tau)} \right\rangle_{electron} \quad (89)$$

となる。ここで、 $\theta(\tau) = \lambda \int_0^{\tau} dt I(t)$, $\lambda = -2 \int \vec{a} d\vec{s}$ である。 λ についての積分は電流が通過した曲面の表面に沿って行う。こうして、電流によってスピンが歳差運動し、その角度が電流に比例することが示せた。歳差角は透過電子数 q を用いて $\theta(t) = \lambda q$ と書けるので、式 (89) は

$$\left\langle e^{i\theta(\tau)} \right\rangle_{electron} = \sum_q e^{i\lambda q} p_q \quad (90)$$

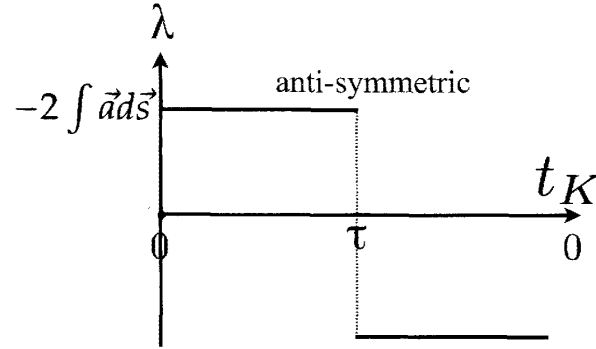


図 13 計数場の図

として完全計数統計の一般の式の形に書き直すことが出来る。結局、式 (83) を再現するように、トンネル項に電流が透過する時の位相として適当な計数場 λ を導入した分配関数を計算することで、特性関数を求めることが出来る。

2.3.3 Keldysh 形式との関係

ここで得られた式は Keldysh 形式でまとめあげることが出来る。式 (88) に着目すると、これは Keldysh 経路上での時間発展と捉えることが出来る。ただし、 $\lambda(t)$ は行きの経路と帰りの経路とで $\lambda = \mp \frac{1}{2} \int \vec{a} d\vec{s}$ のように反対称な関数である必要がある (図 13)。この反対称性及び λ で微分することにより物理量が得られるという構造は、Keldysh 形式における外源の量子成分と同じであるため、特性関数を

$$Z(\lambda) = \left\langle T_c \exp \left(-i \int_K H_\lambda(t) dt \right) \right\rangle_I \quad (91)$$

と Keldysh 形式における分配関数のような形で書くことが出来る。ただし、 H_λ は λ を摂動として含めた相互作用表示における Hamiltonian である。計数場としては λ, χ などの記号が良く用いられるが、以降は文献 [38] に表記を合わせ、 χ を用いることにする。

Levitov と Lesovik は特にスピン検流計のアナロジーから計数場を導入したが、ここで示したようにその構造は Keldysh 形式における外源の量子成分と同じであることが分かった。そのため、電流に限らず、電子数や熱流など、様々な物理量と結合するような外源の量子成分を考えることで、特性関数を計算することが出来る。実際には、トンネル振幅の位相や S 行列の透過係数の位相、あるいは電流と結合する外源の量子成分として計数場を作用や Hamiltonian の中に導入する。計数場で微分したものが計数場に依存する電流になるように計数場に依存した作用を導入した計算も行われている。

2.3.4 例：トンネル接合と量子細線

文献 [98] に従い、計数場の入り方を見るためにトンネル接合、Levitov-Lesovik の公式の形を見るために量子ポイントコンタクトの例を見る。ここでは簡単のため 2 端子測定の場合を考える。

■トンネル接合 計数場の入り方の例としてトンネル接合を考える。Hamiltonian は

$$H = H_1 + H_2 + V \quad (92)$$

と書ける。ここで H_1, H_2 は電極の Hamiltonian である。 $V = J_{12} + J_{21}$ はトンネル項であり、 J_{ij} は電極 i から電極 j へのトンネルに対応する。計数場はトンネル項の位相として導入できて、

$$V_\chi = \exp\left(\frac{i}{2}\chi(t)\right)J_{12}(t) + \exp\left(-\frac{i}{2}\chi(t)\right)J_{21}(t) \quad (93)$$

と書ける。この計数場に依存するトンネル項を用いて書いた分配関数が特性関数になり、

$$Z(\chi) = \left\langle T_K \exp\left(-i \int_C V_{\chi(t')} (t') dt'\right) \right\rangle_{el} \quad (94)$$

となる。摂動の最低次の項を拾うと、

$$Z(\chi) = \exp(F(\chi)), \quad (95)$$

$$F(\chi) = -\frac{1}{2} \int_C \int_C \langle T_K V_{\chi(t')} (t') V_{\chi(t'')} (t'') \rangle \quad (96)$$

$$= (e^{i\chi} - 1)N_{12}(\tau) + (e^{-i\chi} - 1)N_{21}(\tau) \quad (97)$$

となる。ただしここで

$$N_{ij} = \int_0^\tau \langle J_{ji}(t') J_{ij}(t'') \rangle dt' dt'' \quad (98)$$

となる。これにより、電流の k 次のキュムラントは

$$C_k = N_{12}\tau + (-1)^k N_{21}\tau \quad (99)$$

となる。たとえば、電流は $I = e^* (N_{12}\tau + (-1)^k N_{21}\tau)$ と書ける。ここで e^* は準粒子の電荷である。詳細釣り合いの関係式 $N_{12}/N_{21} = \exp(e^*V/k_B T)$ を用いて、電流 I と電流のノイズ S_2 及び 3 次のモーメントの間に

$$S_2 = e^* I \coth\left(\frac{\beta e^* V}{2}\right), \quad (100)$$

$$S_3 = (e^*)^2 I \quad (101)$$

のような関係式が導ける。電流を測定してもどのような準粒子が輸送のキャリアになっているかは分からないが、加えて電流ノイズや3次のモーメントを測ることで準粒子の電荷そのものを見いだすことが出来るため、高次のキュムラントが輸送メカニズムを調べるのに便利であることを意味している。また、ここでは電流と電流ノイズ及び3次のモーメントの関係を綺麗な形にまとめることが出来たが、これはトンネル接合には内部構造由来の透過係数のエネルギー依存性が無いからである。

■量子細線 Levitov-Lesovik の公式の形を見るために、散乱行列での記述が適当な量子細線を考える。特性関数は各エネルギーごとの特性関数の積として書いて、

$$Z(\chi) = \exp\left(\tau \int \ln Z_\epsilon(\chi) \frac{d\epsilon}{2\pi\hbar}\right) \quad (102)$$

輸送のチャンネル i_1, \dots, i_k から j_1, \dots, j_k への遷移過程を考えると、エネルギー ϵ の特性関数は

$$Z_\epsilon(\chi) = \sum_{i_1, \dots, i_k, j_1, \dots, j_k} e^{\frac{\chi}{2}(\chi_{i_1} + \dots + \chi_{i_j} - \chi_{j_1} - \dots - \chi_{j_k})} P(i_1, \dots, i_k | j_1, \dots, j_k) \quad (103)$$

と書ける。ここで $P(i_1, \dots, i_k | j_1, \dots, j_k)$ は輸送確率で

$$P(i_1, \dots, i_k | j_1, \dots, j_k) = |S(i_1, \dots, i_k | j_1, \dots, j_k)|^2 \prod_{i \neq i_\alpha} (1 - n_i(\epsilon)) \prod_{i=i_\alpha} n_i(\epsilon) \quad (104)$$

と書ける。ここで $S(i_1, \dots, i_k | j_1, \dots, j_k)$ は反対称化された一粒子の振幅の積であり、散乱行列の注目しているチャンネルについての部分である。この積構造が行列式になっていることに着目すると

$$Z_\epsilon(\chi) = \det(\hat{1} - \hat{n}_\epsilon + \hat{n}_\epsilon S_{-\chi}^{-1} S_\chi) \quad (105)$$

と書ける。ここで \hat{n}_ϵ は $m \times m$ 行列であり m はチャンネル数である。

今、簡単のため $m = 2$ とすると、散乱行列のユニタリ性： $|S_{1i}|^2 + |S_{2i}|^2 = 1$ 、 $|\det S| = 1$ を用いて、

$$Z_\epsilon(\chi) = 1 + T(e^{i\chi} - 1)n_1(1 - n_2) + T(e^{-i\chi} - 1)n_2(1 - n_1) \quad (106)$$

と書き直せる。ここで $\chi = \chi_1 - \chi_2$ 、 $T = |S_{12}|^2 = |S_{21}|^2$ である。計数場の依存性が $e^{\pm i\chi} - 1$ の項に収まっていることに注意する。この形の特性関数を Levitov-Lesovik 型の特性関数と呼ぶ。

特性関数が求まれば、その対数を計数場で微分すれば電流に関するキュムラントが得られる。電流やそのノイズは、 $n_i^+ = n_i$ 、 $n_i^- = 1 - n_i$ として

$$I = \tau e^* \int T \{n_1^+ n_2^- - n_2^+ n_1^-\} \frac{d\epsilon}{2\pi\hbar} \quad (107)$$

$$S_2 = \tau e^{*2} \int \left[T \{n_1^+ n_2^- + n_2^+ n_1^-\} - T^2 \{n_1^+ n_2^- - n_2^+ n_1^-\} \right] \frac{d\epsilon}{2\pi\hbar} \quad (108)$$

となり、この場合には Landauer 型の電流が得られていることが分かる。

3 結果

この章では、本研究で得られた量子ドットの熱電効果に関する結果を述べる。3.1、3.2 節で文献 [38] のレビュー及び具体的な系におけるデモンストレーションを行う。ここでは初めに相互作用を含んだ一般の場合について議論し、その後に具体的な系を用いてデモンストレーションを行うという形式で記述する。3.3 節の結果が本研究の主たる結果であり、非線形 Peltier 係数に含まれる測定の難しい熱流に関する量を電流に関する量で書き換えられることを示す。

3.1、3.2 節で用いる具体的な系としては、量子的な干渉効果を見るのに最も簡単なセットアップとして、二端子二重量子ドットの Aharonov-Bohm (AB) 干渉計を用いることにした [図 14]。具体例では電子のスピン自由度は無視し、電子間の相互作用は無い場合を考えた。一般の場合における Hamiltonian はすでに示したが、具体的な場合の Hamiltonian を示す：

$$H = H_0 + H_T, \quad H_0 = \sum_{r=1}^2 H_r + H_d, \quad (109)$$

$$H_r = \sum_k \epsilon_{rk} a_{rk}^\dagger a_{rk}, \quad (110)$$

$$H_d = \sum_{i=1}^2 \epsilon_i d_i^\dagger d_i, \quad (111)$$

$$H_T = \sum_{rki} t_{rki} d_i^\dagger a_{rk} + h.c. \quad (112)$$

$H_r \cdot H_d \cdot H_T$ がそれぞれ電極・ドット・トンネルの項である。添字 r は電極の電子、添字 i はドットの電子に関する添字である。磁場 B の効果はトンネル項の位相として $t_{2k1} = |t_{2k1}| \exp i\phi$ のように導入した。ここで、磁束 ϕ は磁場 B の奇関数である。

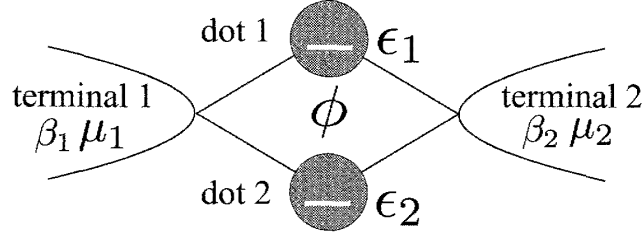


図 14 二端子二重量子ドットアハロノフボーム (AB) 干渉計。AB 磁束 ϕ が環を貫いている。

3.1 揺らぎの定理

3.1.1 一般の場合

完全計数統計のアプローチに従い、電極 r とドットの間を流れる電荷 q_{cr} と熱 q_{hr} の特性関数 \mathcal{Z} を導入する：

$$\mathcal{Z}(\{\chi_{cr}\}, \{\chi_{hr}\}; B) = \left\langle T_K \exp \left(-i \int_K dt H_T^\chi(t)_I \right) \right\rangle, \quad (113)$$

ここで平均は初期状態における密度行列 ρ_0 を用いてとる。時間積分は Kadanoff-Baym 経路 K にわたって行う。また、 T_K は経路 K 上での時間順序積である。添字 I は相互作用表示を意味し、 $H_T^\chi(t)_I = \exp(iH_0 t) H_T^\chi \exp(-iH_0 t)$ である。計数場込みの Hamiltonian H_T^χ は元の Hamiltonian においてトンネル項 t_{rki} を $t_{rki} \exp(i\chi_{cr} + i\epsilon_{rk}\chi_{hr})$ で置き換えることにより得られる。こうしてトンネル項の位相として計数場が導入される。このように導入することで計数場が流れと結合した外源のように流れを生成することを確認出来る。特性関数は次のような規格化条件を満たす：

$$\mathcal{Z}(\{0\}, \{0\}; B) = 1. \quad (114)$$

また、さらに定常状態におけるキュムラント生成関数を導入する：

$$\mathcal{F}(\chi_{cr}, \chi_{hr}; B) = \lim_{\tau \rightarrow \infty} \frac{\ln \mathcal{Z}(\{\chi_{cr}\}, \{\chi_{hr}\}; B)}{\tau}. \quad (115)$$

定常状態において、キュムラント生成関数は計数場の差のみによる ($\chi_\alpha = \chi_{\alpha 1} - \chi_{\alpha 2}$)。

ミクロな描像における時間反転対称性により、特性関数とキュムラント生成関数に関する次の関係式が得られる [38]：

$$\mathcal{F}(\chi_c, \chi_h; B) = \mathcal{F}(-\chi_c + i\mathcal{A}_c, -\chi_h + i\mathcal{A}_h; -B). \quad (116)$$

この導出を付録付録 C に示す。ここで \mathcal{A}_c と \mathcal{A}_h は親和力 (Affinity) であり、 $\mathcal{A}_c = \mathcal{A}_{c1} - \mathcal{A}_{c2} = \beta_1\mu_1 - \beta_2\mu_2$ 、 $\mathcal{A}_h = \mathcal{A}_{h1} - \mathcal{A}_{h2} = -\beta_1 + \beta_2$ として定義される。この関係式 (116) より、量子版の揺らぎの定理が得られる。揺らぎの定理を導くためにはエントロピー生成率の確率分布を求める必要がある。そのために電流と熱流の計数場の関係を固定して新たにエントロピー生成率の計数場 χ を定義し、 χ について逆 Fourier 変換をする。メゾスコピック系における輸送では電荷と熱の流れの両方がエントロピー生成に寄与し、測定時間 τ におけるエントロピー生成 $\Delta S = \int_0^\tau dt I_S(t)$ は次のように書ける：

$$\Delta S_\tau = \mathcal{A}_c q_c + \mathcal{A}_h q_h. \quad (117)$$

ここでエントロピー生成率の計数場 χ を χ_c, χ_h の関係を $\chi_c = \mathcal{A}_c \chi$ かつ $\chi_h = \mathcal{A}_h \chi$ のように固定することで導入した。エントロピー生成率の確率分布は特性関数のフーリエ変換として得られ、定常状態においては大偏差解析により

$$P(I_S) = \frac{1}{2\pi} \int d\chi e^{-i\chi \tau I_S} \mathcal{Z} \sim e^{-\tau \Omega}, \quad (118)$$

$$\Omega(I_S) = -\min_{\chi} [\mathcal{F}(\chi) - i\chi I_S] \quad (119)$$

と書くことが出来る。この関係式を用いて、式 (116) の両辺を指数の肩に乗せ、両辺を逆 Fourier 変換してエントロピー生成率の定義を用いることで、標準的な形の揺らぎの定理を得ることが出来る：

$$\lim_{\tau \rightarrow \infty} \frac{1}{\tau} \ln \left[\frac{P(I_S; +B)}{P(-I_S; -B)} \right] = I_S. \quad (120)$$

このように量子版の揺らぎの定理は磁場が有る場合においても成り立ち、熱電気磁気効果に関する情報をも与える。

3.1.2 例 :AB リング干渉計

この節では揺らぎの定理 (120) を相互作用の無い二重量子ドット AB 干渉計を例として示す。3.3 節で Kelvin-Onsager 関係式のような便利な書き換えを非線形領域に拡張するが、その拡張は相互作用がある場合にも一般に成り立つ。キュムラント生成関数は Schwinger-Keldysh の方法を用いて実時間の経路積分の計算をすることによって得られる [61, 106, 107]。式 (113) の計算は、はじめに電極の自由度について積分をして量子ドットに関する有効問題に落としたあと、次にトンネル項について級数展開をした後に定常状

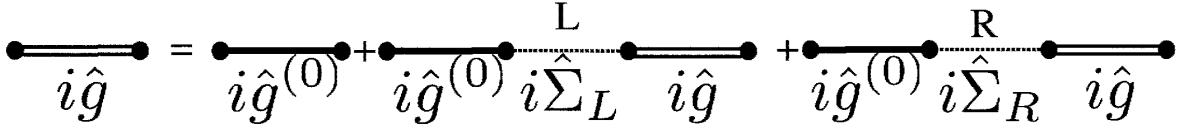


図 15 Dyson 方程式の模式図。 $i\hat{g}^{(0)}$ が裸のドットの Green 関数。電極にトンネルして戻ってくる効果を自己エネルギーとして含んだものがドットの非平衡 Green 関数 $i\hat{g}$ になる。

態という条件下で級数をまとめあげることにより実行できる。具体的な計算を付録付録 E に示す。計算を行うと、 \mathcal{F} の解析的な表式が得られる：

$$\mathcal{F}(\{\chi_\alpha\}, B) = \frac{-1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \ln \det \hat{g}(\omega) \left[\hat{g}(\omega) \Big|_{\chi_\alpha=0} \right]^{-1}, \quad (121)$$

ここで $\hat{g}(\omega)$ はドットの非平衡 Green 関数であり、ドットの位置と Keldysh 空間の添字を持つため、ドットの準位数 $\times 2$ の大きさの行列で表せる。ドットの非平衡 Green 関数 $\hat{g}(\omega)$ は電極の効果を自己エネルギーとして含む。2 端子の場合について、これを Dyson 方程式の形で図示したものを図 3.1.2 に示す。

非平衡 Green 関数の逆行列の Keldysh 空間における行列要素は

$$\left[\hat{g}(\omega)^{-1} \right]_{ij} = \omega \delta_{ij} \hat{\tau}^3 - \delta_{ij} \epsilon_i \hat{\tau}^3 - \sum_r \hat{\tau}^3 \hat{\Sigma}_{rij}(\omega) \hat{\tau}^3 \quad (122)$$

であり、 $\hat{\tau}^3 = \text{diag}(1, -1)$ は Keldysh 空間に作用するパウリ行列である。自己エネルギー $\hat{\Sigma}_{rij}(\omega)$ は電極の電子について積分することにより得られ、電極のバンド幅が無大の極限において

$$\hat{\Sigma}_{rij}(\omega) = \begin{pmatrix} \Sigma_{rij}^{++}(\omega) & \Sigma_{rij}^{+-}(\omega) \\ \Sigma_{rij}^{-+}(\omega) & \Sigma_{rij}^{--}(\omega) \end{pmatrix}, \quad (123)$$

$$\Sigma_{rij}^{\pm\pm}(\omega) = -i\Gamma_{rij} \left(\frac{1}{2} - f_r^{\pm}(\omega) \right), \quad (124)$$

$$\Sigma_{rij}^{\pm\mp}(\omega) = \pm i\Gamma_{rij} f_r^{\pm}(\omega) \exp^{\pm i(\chi_{lr}\omega + \chi_{cr})} \quad (125)$$

のように書ける。トンネル結合の強度はエネルギーに依存しないと仮定し、次のように書ける：

$$\Gamma_{rij} = 2\pi \sum_k t_{rki} t_{rkj}^* \delta(\omega - \epsilon_{rk}). \quad (126)$$

以降では $\Gamma_{1ij} = \Gamma_{2ij} = \Gamma$ とする。フェルミ及びホール分布は

$$f_r^{\pm}(\omega) = \frac{1}{e^{\pm\beta_r(\omega - \mu_r)} + 1} \quad (127)$$

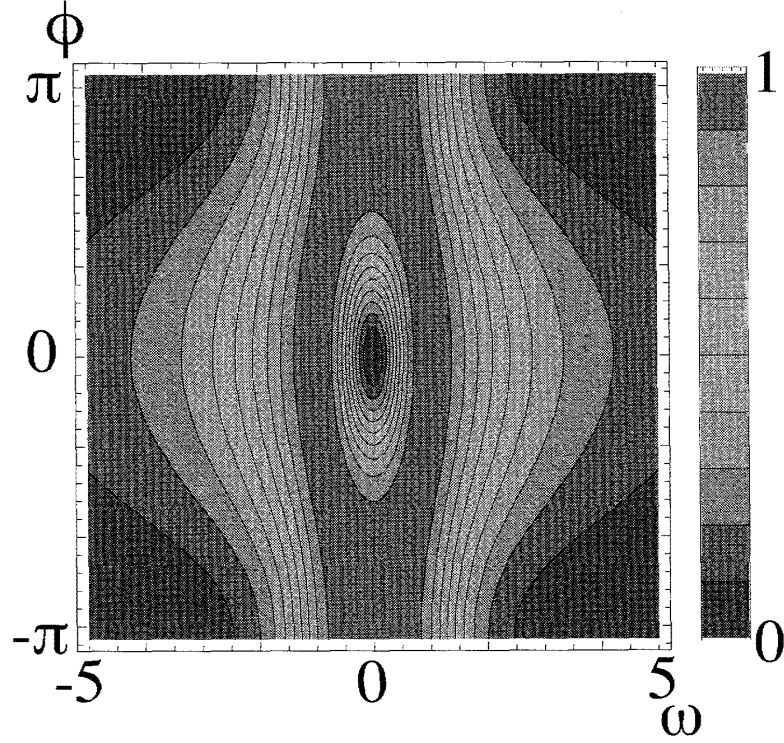


図 16 二重ドット AB リングの透過確率。横軸がエネルギー ω 、縦軸が磁束 ϕ を表す。

と書ける。ここで $f_r^+(\omega) = 1 - f_r^-(\omega)$ である。Green 関数の逆行列の行列式は

$$\det \hat{g}(\omega)^{-1} = 1 + \sum_{j,k=1}^2 \left(e^{i(\chi_{hj}\omega + \chi_{cj} - \chi_{hk}\omega - \chi_{ck})} - 1 \right) \times f_j^+(\omega) f_k^-(\omega) \mathcal{T}(\omega; B) \quad (128)$$

と書け、透過確率は次のように書ける：

$$\mathcal{T}(\omega; B) = 4 \left[(\omega - \bar{\epsilon})^2 \cos^2 \frac{\phi}{2} + \delta\epsilon^2 \sin^2 \frac{\phi}{2} \right] / \left\{ \left[(\bar{\epsilon} - \omega)^2 - \delta\epsilon^2 \right]^2 + \Gamma^4 \sin^4 \frac{\phi}{2} + 2\Gamma^2 \times \left[\delta\epsilon^2 \sin^2 \frac{\phi}{2} + (\bar{\epsilon} - \omega)^2 \left(1 + \cos^2 \frac{\phi}{2} \right) \right] \right\}. \quad (129)$$

ここで $\bar{\epsilon} = (\epsilon_1 + \epsilon_2)/2$ 、 $\delta\epsilon = (\epsilon_1 - \epsilon_2)/2$ とおいた。良く知られているように、相互作用が無い場合透過確率は磁場の偶関数となる。透過確率のグラフを図 3.1.2 に示す。

キュムラントの生成関数 $F(\chi)$ が求まったため、電流・熱流の高次のキュムラントを求めることが出来る。透過確率 $\mathcal{T}(\omega; B)$ には計数場は含まれていないため、微分に際して

式 128 の右辺の指数の計数場に着目すれば十分であり、計算を容易にすることが出来る。例えば、計数場について一階微分をすることにより電流・熱流は

$$\langle\langle I_c \rangle\rangle = \int \frac{d\omega}{2\pi} [f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) - f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}(\omega; B), \quad (130)$$

$$\langle\langle I_h \rangle\rangle = \int \frac{d\omega}{2\pi} \omega [f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) - f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}(\omega; B) \quad (131)$$

となる。 $f_r^+(\omega) = 1 - f_r^-(\omega)$ に注意すれば、これらの式は Landauer 型であることが分かる。また、特性関数の規格化条件により計数場を 0 とすると対数の中身は 1 になることを用いると計算が楽である。さらに、二階以上の微分を行うことによりノイズ等の高次のキュムラントも計算できる。電流と熱流のノイズ及び相関は、

$$\begin{aligned} \langle\langle I_c I_c \rangle\rangle = & \int \frac{d\omega}{2\pi} ([f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) + f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}(\omega; B) \\ & - [f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) - f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}^2(\omega; B)), \end{aligned} \quad (132)$$

$$\begin{aligned} \langle\langle I_c I_h \rangle\rangle = & \int \frac{d\omega}{2\pi} \omega ([f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) + f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}(\omega; B) \\ & - [f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) - f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}^2(\omega; B)), \end{aligned} \quad (133)$$

$$\begin{aligned} \langle\langle I_h I_h \rangle\rangle = & \int \frac{d\omega}{2\pi} \omega^2 ([f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) + f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}(\omega; B) \\ & - [f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) - f_2^+(\omega) f_1^-(\omega)] \mathcal{T}^2(\omega; B)) \end{aligned} \quad (134)$$

として得られる。

式 (128) の形は Levitov-Lesovik の公式の形であり、この表式において被積分関数の二つの項

$$\exp[i(\chi_c + \omega\chi_h)] f_1^+(\omega) f_2^-(\omega) \mathcal{T}(\omega; B)$$

と

$$\exp[-i(\chi_c + \omega\chi_h)] f_2^+(\omega) f_1^-(\omega) \mathcal{T}(\omega; B)$$

を入れ替えて、 $\chi_\alpha \rightarrow -\chi_\alpha + i\mathcal{A}_\alpha$ と置き換えることにより、式 (116) が確かに成り立っていることを容易に見て取ることが出来る。この変換により、フェルミ分布関数とホールの分布関数が入れ替わる。さらに、 $\mathcal{T}(\omega, B) = \mathcal{T}(\omega, -B)$ のように磁場についての偶関数であることを用いれば、二端子二重ドット AB 干渉計におけるキュムラント生成関数に関する時間反転対称性 (116) が成り立っていることが確認できる。

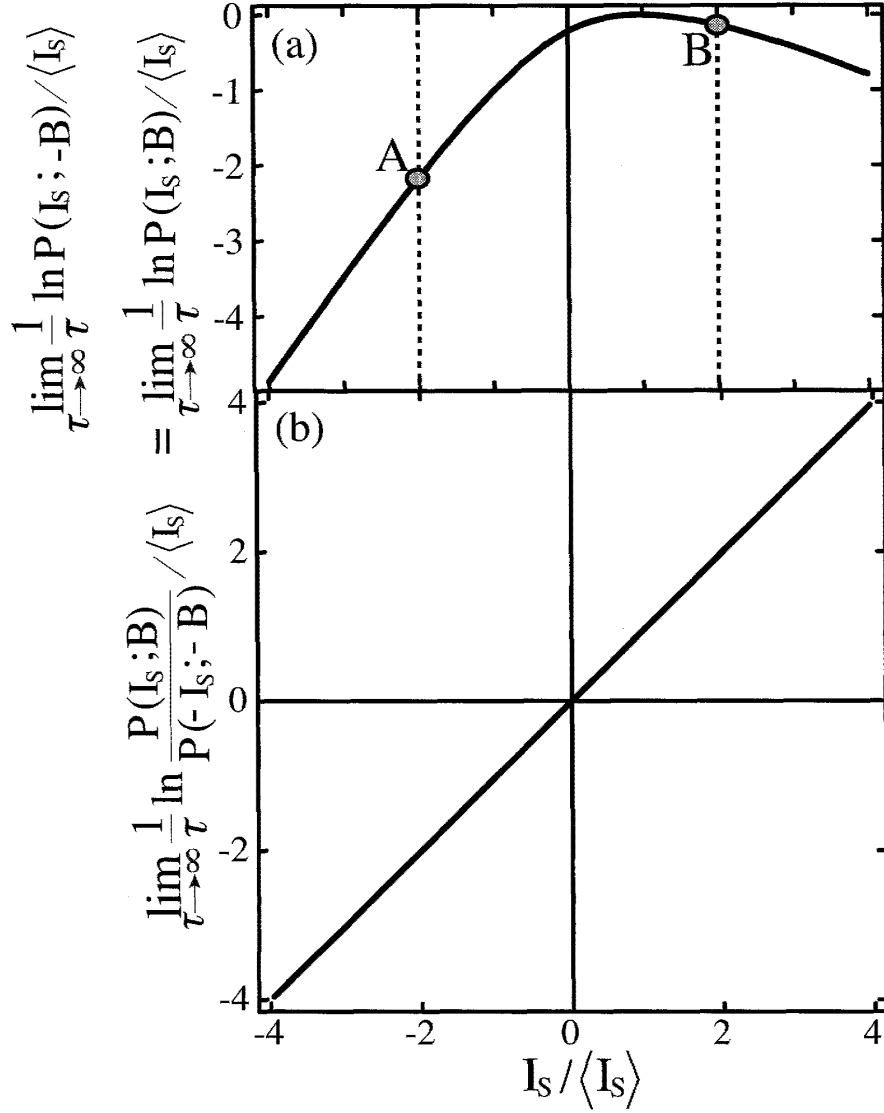


図 17 (a) 二端子二重量子ドット AB リングのエントロピー生成率の確率分布の対数。透過確率が磁場の偶関数なので、磁場の符号を変えた二つの確率分布は一致する。点 A, B は I_S の大きさが等しく符号が逆な二点の組。このような組を取り、確率分布の比を作ることによって揺らぎの定理を確認できる。(b) 揺らぎの定理 (120) のデモンストレーション。パラメタ: $B = 0, \bar{\epsilon} = 0, \delta\epsilon = \Gamma, \mu_1 = 2\Gamma, \mu_2 = -2\Gamma, T_1 = 3\Gamma, T_2 = \Gamma$.

図 17(a) はエントロピー生成率の確率分布の対数を示したものである。横軸はエントロピー生成率の平均値 $\langle \Delta S \rangle$ で規格化してある。系が定常状態にあるため、エントロピー生成率の平均値は正である。しかし、エントロピー生成が負になるような過程が生じる確率も有限に存在することが見て取れる。図 17(b) は揺らぎの定理を示した図である。式 (120) の左辺をエントロピー生成率の関数として表すと、系のパラメタによらず傾きは正確に 1 であり、揺らぎの定理は常に成り立っている。

3.2 拡張 Onsager 関係式

3.2.1 一般の場合

この節では、電流と熱流の非線形輸送係数に関する普遍的な関係式を示す。キュムラントの生成関数を計数場について微分することによりキュムラントが得られる。例えば、1 階の微分は流れについての平均値を与え、2 階の微分はノイズを与える：

$$\langle\langle I_c \rangle\rangle = \frac{\partial \mathcal{F}(0, 0; B)}{\partial i\chi_c}, \quad (135)$$

$$\langle\langle I_c I_h \rangle\rangle = \frac{\partial^2 \mathcal{F}(0, 0; B)}{\partial i\chi_c \partial i\chi_h}. \quad (136)$$

非線形の輸送係数はキュムラントを親和力について展開してものとして定義される：

$$L_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(B) = \left. \frac{\partial^{l_1+l_2} \langle\langle I_c^{k_1} I_h^{k_2} \rangle\rangle}{\partial \mathcal{A}_c^{l_1} \partial \mathcal{A}_h^{l_2}} \right|_{\mathcal{A}_c = \mathcal{A}_h = 0}. \quad (137)$$

便利のため、輸送係数とキュムラント生成関数を磁場について対称化／反対称化する：

$$\mathcal{F}_{\pm}(\chi_{\alpha}) = \mathcal{F}(\chi_{\alpha}, B) \pm \mathcal{F}(\chi_{\alpha}, -B), \quad (138)$$

$$L_{l_1, l_2}^{k_1, k_2, \pm}(B) = L_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(B) \pm L_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(-B). \quad (139)$$

式 (116) から、対称化／反対称化したキュムラント生成関数に関する時間反転対称性の式が得られる：

$$\mathcal{F}_{\pm}(\chi_{\alpha}) = \pm \mathcal{F}_{\pm}(-\chi_{\alpha} + i\mathcal{A}_{\alpha}). \quad (140)$$

この等式の両辺を親和力と計数場が 0 の周りでテイラー展開して係数を比較することで、輸送係数の間の一般の関係式を得る：

$$L_{l_1, l_2, \pm}^{k_1, k_2} = \pm \sum_{n_1=0}^{l_1} \sum_{n_2=0}^{l_2} \binom{l_1}{n_1} \binom{l_2}{n_2} (-1)^{n_1+n_2+k_1+k_2} L_{l_1-n_1, l_2-n_2, \pm}^{k_1+n_1, k_2+n_2}. \quad (141)$$

この関係式は式 140 の両辺に $\frac{\partial^{l_1+l_2}}{\partial \mathcal{A}_c^{l_1} \partial \mathcal{A}_h^{l_2}} \frac{\partial^{k_1+k_2}}{\partial i\chi_c^{k_1} \partial i\chi_h^{k_2}}$ を作用させることを得ることも出来る。二項係数とそこに表れる n_1, n_2 についての和は、親和力についての微分が関数 \mathcal{F}_\pm そのものか、引数の $-\chi_\alpha + i\mathcal{A}_\alpha$ にかかるかについての場合の数に由来している。

これらの関係式は $N = k_1 + k_2 + l_1 + l_2$ の等しい項の間の関係式となっている。 $N = 2$ の関係式は線形応答におけるよく知られた関係式となる：

$$L_{00}^{20}(B) = 2L_{10}^{10}(B), \quad (142)$$

$$L_{00}^{02}(B) = 2L_{01}^{01}(B), \quad (143)$$

$$L_{10}^{01}(B) = L_{01}^{10}(-B), \quad (144)$$

$$L_{10}^{10}(B) = L_{10}^{10}(-B), \quad (145)$$

$$L_{01}^{01}(B) = L_{01}^{01}(-B). \quad (146)$$

式 (142) は電荷揺らぎに関する揺動散逸定理であり、式 (143) は熱揺らぎに関する揺動散逸定理である [20]。式 (144)-(146) は Onsager の関係式である。 $N \geq 3$ の式は非線形輸送係数に関する関係式である。 $N = 3$ に対する式は

$$L_{10,+}^{20} = L_{20,+}^{10}, \quad (147)$$

$$L_{10,+}^{11} = L_{20,+}^{01} = 2L_{11,+}^{10} - L_{01,+}^{20}, \quad (148)$$

$$L_{01,+}^{11} = L_{02,+}^{10} = 2L_{11,+}^{01} - L_{10,+}^{02}, \quad (149)$$

$$L_{01,+}^{02} = L_{02,+}^{01}, \quad (150)$$

$$L_{00,+}^{30} = L_{00,+}^{03} = 0, \quad (151)$$

$$L_{20,-}^{10} = L_{10,-}^{20}/3 = L_{00,-}^{30}/6, \quad (152)$$

$$L_{01,-}^{20} = L_{20,-}^{01} + 2L_{11,-}^{10}, \quad (153)$$

$$L_{10,-}^{02} = L_{02,-}^{10} + 2L_{11,-}^{01}, \quad (154)$$

$$L_{02,-}^{01} = L_{01,-}^{02}/3 = L_{00,-}^{03}/6. \quad (155)$$

である。非線形輸送係数 L_{kl}^{ij} は実験にかかる量との関係が自明では無いため、微分コンダクタンスなどの良く用いられる量との対応を付録付録 F に書いた。

似たような関係式を導いた例として、分布関数の局所詳細釣り合いの形の揺らぎの定理から出発して Onsager の相反関係に限り非線形領域に拡張するという仕事が文献 [108] でなされている。流れの分布関数そのものと相反関係の関係を示しているため興味深い。が、磁場を含んでいないこと、高次のキュムラントについては触れられていないこと、分布関数を既知とした計算になっていることなどが、上での関係式の導出と異なっている。

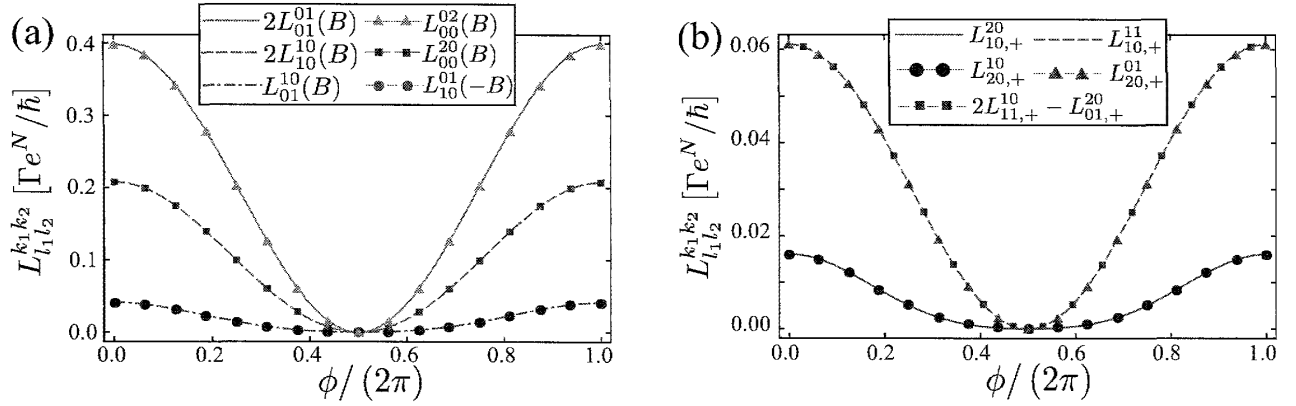


図 18 電流と熱流の輸送係数の AB 振動を示す。横軸は磁束である。(a) 線形輸送係数 ($N = 2$), (b) 非線形輸送係数 ($N = 3$) パラメタ: $\bar{\epsilon} = \Gamma$, $\delta\epsilon = 0$, $T_1 = 3\Gamma$, $T_2 = \Gamma$.

3.2.2 例 :AB リング干渉計

次に二端子二重ドット AB リング干渉計を用いて電流の熱流の非線形輸送係数の間の関係式を確認する。図 18 (a) は線形輸送係数 ($N = 2$) の AB 振動であり、電流及び熱流の揺動散逸定理と Onsager の相反定理が成り立つことを示している。相互作用が無い系では、キュムラント生成関数は常に磁場について偶関数となるため、定義より非線形輸送係数の反対称成分 L_- は消える。非線形輸送係数における関係式のうち、特に式 (147) と (149) は非自明でかつ測定がしやすい量だと思われる。式 (147) は電流ノイズの線形応答と電流の非線形応答の関係式であり、式 (149) は電流と熱流の非線形な応答と相関の間の関係式である。図 18(b) は式 (147) と (149) が確かに成り立っていることを示している。

3.3 非線形 Kelvin・Onsager 関係式

Kelvin-Onsager の関係式を用いることで、線形応答領域において熱流を測定することなしに Peltier 係数を得ることが出来た。この節ではこれを非線形領域に拡張する。まず Peltier 係数の非線形領域における補正項を得るために熱流を親和力で展開する：

$$I_h = L_{10}^{01} \mathcal{A}_c + L_{20}^{01} \mathcal{A}_c^2 / 2 + \dots, \quad (156)$$

ここに現れる非線形の輸送係数 L_{n0}^{01} ($n > 1$) が常に電流やそのキュムラントの輸送係数 L_{n21}^{n10} で書き換えることが出来ることが重要である。熱流の非線形輸送係数に関する拡張

Onsager の関係式 (141) において、 $k_1 = i, l_1 = N - i, k_2 = 0, l_2 = 1, n_1 = j - i$ と置くと、

$$L_{N-i1,\pm}^i = \pm \sum_{j=i}^N M_{ij} (L_{N-j1,\pm}^j - L_{N-j0,\pm}^j) \quad (157)$$

となる。ここで M は上三角行列でありその行列要素は次のようになる。

$$M_{ij} = \begin{cases} \binom{N-i}{j-i} (-1)^j & (i \leq j) \\ 0 & (i > j) \end{cases} \quad (158)$$

ここで $i, j = 0, \dots, N$ である。 $N = 3$ の場合に具体的にこの式を書いてみると

$$\begin{pmatrix} L_{31,\pm}^{00} \\ L_{10,\pm}^{10} \\ L_{21,\pm}^{20} \\ L_{11,\pm}^{30} \\ L_{01,\pm}^{30} \end{pmatrix} = \pm \begin{pmatrix} 1 & -3 & 3 & -1 \\ 0 & -1 & 2 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \left\{ \begin{pmatrix} L_{31,\pm}^{00} \\ L_{10,\pm}^{10} \\ L_{21,\pm}^{20} \\ L_{11,\pm}^{30} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} L_{30,\pm}^{01} \\ L_{11,\pm}^{11} \\ L_{20,\pm}^{21} \\ L_{10,\pm}^{31} \end{pmatrix} \right\} \quad (159)$$

となる。また、簡単な計算によりこれらの要素は $\sum_j M_{ij} M_{jk} = \delta_{ik}$ を満たすことが分かる。したがって、式 (157) の両辺に M_{ij} の逆行列をかけて、電流の次数を 0 に置き、 $L_{l_1 l_2, \pm}^{00} = 0$ を用いると、熱流のソース-ドレイン電圧の N 次の応答の一般的な表式を得る：

$$L_{N0,\pm}^{01} = \mp \sum_{k=1}^N M_{0k} L_{N-k1,\pm}^k. \quad (160)$$

この表式により、直接の測定が難しい熱流に関する輸送係数を、電流に関する輸送係数に書き換えることが出来ることが分かる。式 (160) において $N = 1$ または $N = 2$ とすると、

$$L_{10}^{01}(B) = L_{01}^{10}(-B), \quad (161)$$

$$L_{20}^{01}(B) = 2L_{11}^{10}(-B) - L_{01}^{20}(-B). \quad (162)$$

式 (160) により、Peltier 係数の非線形補正項が得られる。展開式

$$I_c = L_{10}^{10} \mathcal{A}_c + L_{20}^{10} \mathcal{A}_c^2 / 2 + \dots \quad (163)$$

を用いて、親和力 \mathcal{A}_c を式 (156) から消去すると、Peltier 係数 (1) を電流で展開した式が得られる：

$$\Pi = \Pi^{(1)} + \Pi^{(2)} I_c + \dots \quad (164)$$

線形項 $\Pi^{(1)}$ に式 (161) を用いることにより通常の Kelvin-Onsager 関係式が再現される：

$$\Pi^{(1)} = \frac{L_{10}^{01}(B)}{L_{10}^{10}(B)} = \frac{L_{01}^{10}(-B)}{L_{10}^{10}(B)} = TS_{TP}(-B). \quad (165)$$

非線形補正項は一般に複雑になり、線形の場合に存在したような単純な相反関係は無い。例えば、二次の補正項は

$$\Pi^{(2)} = \frac{L_{10}^{01}(B)}{2L_{10}^{10}(B)^2} \left(\frac{L_{20}^{01}(B)}{L_{10}^{01}(B)} - \frac{L_{20}^{10}(B)}{L_{10}^{10}(B)} \right) \quad (166)$$

となる。ここでは二次までの具体的な補正項の形を示したが、必要であれば任意の次数において補正項の具体的な形を同様に求めることが出来る。ここで揺らぎの定理から導かれる式 (162) を用いることで、これらの補正項を熱流に関する輸送係数を用いない形に書き直すことが出来る：

$$\frac{\Pi^{(2)}}{T} = -\frac{S_{TP}(-B)}{2} \left(\frac{L_{20}^{10}(B)}{L_{10}^{10}(B)^2} + \frac{L_{01}^{20}(-B) - 2L_{11}^{10}(-B)}{L_{10}^{10}(B)L_{01}^{10}(-B)} \right). \quad (167)$$

補正項は電流の非線形輸送係数 L_{10}^{10} と L_{20}^{10} 、電流と電流ノイズの熱に関する親和力 \mathcal{A}_h の 1 次の応答 L_{01}^{10} と L_{01}^{20} 、そして電流の \mathcal{A}_c と \mathcal{A}_h に関する非線形応答 L_{11}^{10} で書き換えることが出来た。以上の議論において展開の次数などに制限は加えていないため、同様の議論が任意の次数で成立する。つまり、非線形 Peltier 係数の測定において、熱流を測定する必要は無いと言える。式 (167) は非線形領域における Peltier 係数を電氣的な量だけで与えるという意味で Kelvin-Onsager 関係式の拡張と考えることが出来る。

4 まとめと展望

4.1 まとめ

磁場下における熱電的な輸送に関する量子版の揺らぎの定理について論じた。量子的なコヒーレンスの効果は完全計数統計を用いることにより完全に取り込まれている。揺らぎの定理より、熱及び電氣的な輸送に関する Onsager の関係式の拡張、つまり電流と熱流に関する輸送係数の普遍的な関係式を得た。これらの関係式が成り立つことを二端子二重ドット AB リング干渉計を例として示した。拡張 Onsager 関係式は 2.1 節で示したような相互作用を含む一般の系で成り立つが、本研究ではこれを非線形熱電効果に適用した。拡張 Onsager 関係式を用いることで測定の難しい熱流をより測定のしやすい量に書き換えることが出来ることが、これらの関係式を用いる利点である。主たる結果として特に Peltier 係数について議論し、Kelvin-Onsager 関係式の非線形補正項の形を求め、それらを測定の比較的容易な電流及び電流のキュムラントで書き表した。この書き換えが本研究の主な結果であり、非線形熱電効果の実験的／理論的研究に役立てられると期待される。

4.2 今後の課題及び展望

これまでの研究では揺らぎの定理を2端子系の熱電効果に適用したが、伝導に寄与する電子間の相互作用は無視していた。この場合、常に非線形輸送係数は磁場について対称になるが、相互作用のある系を考えれば輸送係数に反対称成分が現れる。最近、揺らぎの定理との関連で時間反転に対して反対称な成分は興味を持たれており、電子間相互作用が反対称成分にどのような影響を与えるかは興味深い。量子版の揺らぎの定理は相互作用がある系でも存在するため、この影響を調べる事が出来ると考えられる。

クーロン相互作用やフォノンの影響について調べることも重要である。先行研究として、非線形領域における輸送係数の磁場に対する反対称成分の大きさがクーロン相互作用の大きさに比例することが示されている [18]。また、非弾性散乱や位相緩和の起源としても重要な電子フォノン相互作用は電子のコヒーレンスに大きな影響を与える。環境との相互作用やバイアスの効果が輸送係数の反対称成分について与える影響についての示唆的な研究もあり [109]、これらを俯瞰する立場からの研究が必要であると考えられる。

また、熱電気スピン効果とも呼ぶべき交差効果が最近調べられている。例えば、熱誘起のスピン圧が発生するスピン Seebeck 効果 [110] などである。本研究で熱電気輸送係数を議論したが、それと同様にして熱電気スピン効果の輸送係数も論じることが出来ると期待される。スピン流が絡む現象は特にスピン軌道相互作用が絡む場合に多く議論されているため、具体的な計算はスピン軌道相互作用を取り入れて行うことになる。また、スピン流にはスピンホール効果で生じるような非散逸な流れと、スピン注入で生じるような散逸を伴う流れとに分類される。特に後者を扱う場合にはやはり環境による相互作用の影響を調べる必要があると考えられる。

さらに、熱電効果及び非平衡の遷移過程に関係するものとして電流・熱流の整流作用や電荷・熱ポンプも調べられている。揺らぎの定理は非平衡仕事定理である Jarzynski 等式を導くが、量子揺らぎの定理からも同様に仕事定理を導き一般に緩和過程を含むポンプに対する知見を与えることは、基礎的・実用的に有用である。

いずれの場合にも、揺らぎの定理から意味のある情報を抽出してメソスコピック系に役立て、メソスコピック系を制御性のよい理想的な舞台として揺らぎの定理をはじめとする非平衡物理の理解を深めることが重要であると考えられる。

付録 A Keldysh 形式の関係式

有用な関係式として Langreth の定理と揺動散逸定理を紹介する。詳しい計算は [65, 66] を参照されたい。

■**Langreth の定理** Langreth の定理は閉時間経路の Green 関数を実時間へ射影するための関係式である。Keldysh 空間で定義された閉実時間の関数 A, B, C, D, E があり、

$$C(t, t') = \int_C d\tau A(t, \tau) B(\tau, t'), \quad (168)$$

$$D(t, t') = A(t, t') B(t, t'), \quad (169)$$

$$E(t, t') = A(t, t') B(t', t), \quad (170)$$

である時、

$$C(t, t') = \int_R d\tau [A^R(t, \tau) B^{+-}(\tau, t') + A^{+-}(t, \tau) B^A(\tau, t')], \quad (171)$$

$$C^R(t, t') = \int_R d\tau A^R(t, \tau) B^R(\tau, t'), \quad (172)$$

$$D^{+-}(t, t') = A^{+-}(t, t') B^{+-}(t, t'), \quad (173)$$

$$D^R(t, t') = A^{+-}(t, t') B^R(t, t') + A^R(t, t') B^{+-}(t, t') + A^R(t, t') B^R(t, t'), \quad (174)$$

$$E^{+-}(t, t') = A^{+-}(t, t') B^{-+}(t', t), \quad (175)$$

$$E^R(t, t') = A^{+-}(t, t') B^A(t', t) + A^R(t, t') B^{+-}(t', t) \quad (176)$$

などが成り立つ。ここで \int_C は Keldysh 経路上の積分で、 \int_R は実軸における $\tau = -\infty$ から $\tau = \infty$ までの積分である。証明は簡単で、定義式を具体的に代入することで示せる。

■**揺動散逸定理** ここで言う揺動散逸定理とは、スペクトル関数と greater/lesser Green 関数の間の関係式である。スペクトル関数は

$$A(k, \omega) = i[G^R(k, \omega) - G^A(k, \omega)] = i[G^{-+}(k, \omega) - G^{+-}(k, \omega)] \quad (177)$$

のように定義され、状態密度との関係は

$$\rho(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int \frac{dk}{2\pi} A(k, \omega). \quad (178)$$

また、交換関係を用いれば和則が導ける：

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} A(k, \omega) = 1. \quad (179)$$

greater/lesser Green 関数の定義にエネルギーと粒子数の完全系を挟んで計算し、スペクトル関数の定義式と比べると、

$$G^{+-}(k, \omega) = i f(\omega) A(k, \omega), \quad (180)$$

$$G^{-+}(k, \omega) = -i(1 - f(\omega)) A(k, \omega) \quad (181)$$

のような関係式が得られる。ここで $f(\omega) = 1/(e^{\beta(\omega-\mu)} + 1)$ である。greater/lesser Green 関数が揺らぎの情報を含み、スペクトル関数が散逸の情報を含むため、「揺動散逸定理」と呼ばれる。

付録 B 運動方程式の方法と Dyson 方程式

文献 [69] の運動方程式の部分の式変形を追う。電極 r から流れ込む電流は

$$J_r(t) = -e \langle \dot{N}_r \rangle = -\frac{ie}{\hbar} \langle [H, N_r] \rangle \quad (182)$$

$$= \frac{ie}{\hbar} \sum_{ki} \left[t_{rki} \langle a_{rk}^\dagger d_i \rangle - t_{rki}^* \langle d_i^\dagger a_{rk} \rangle \right] \quad (183)$$

と書ける。この相関を表すため

$$G_{i,rk}^<(t, t') \equiv i \langle a_{rk}^\dagger(t') d_i(t) \rangle \quad (184)$$

$$G_{rk,i}^<(t, t') \equiv i \langle d_i^\dagger(t') a_{rk}(t) \rangle \quad (185)$$

という電極とドット間の lesser Green 関数を導入する。この Green 関数を用いると電流は

$$J_r(t) = \frac{2e}{\hbar} \text{Re} \left\{ \sum_{ki} t_{rki}(t) G_{i,rk}^<(t, t) \right\} \quad (186)$$

と書ける。電極とドット間の Green 関数も Dyson 方程式を満たし、Langreth の公式を用いることで lesser Green 関数についての積分方程式が得られる。

Dyson 方程式を導くために電極とドット間の Green 関数について考える。相互作用表示（チルダで表す）では

$$G_{i,rk}(t, t') \equiv -i \langle T_K \{ S \tilde{d}_i(t) \tilde{a}_{rk}^\dagger(t') \} \rangle \quad (187)$$

$$S = T_K \left\{ \exp \left[-i \int_K dt_1 \tilde{H}_T(t_1) \right] \right\} \quad (188)$$

と書ける。トンネル項 \tilde{H}_T について摂動展開する。摂動の 0 次の項からの寄与は無いため

$$G_{i,rk}(t, t') = -i \left\langle T_K \left\{ \tilde{d}_i(t) \tilde{a}_{rk}^\dagger(t') \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-i)^{n+1}}{(n+1)!} \left[\int_K dt_2 \sum_{k'r'i'} \left\{ t_{r'k'i'}(t_2) \tilde{a}_{r'k'}^\dagger(t_2) \tilde{d}_{i'}(t_2) + t_{r'k'i'}^*(t_2) \tilde{d}_{i'}^\dagger(t_2) \tilde{a}_{r'k'}(t_2) \right\} \right]^{n+1} \right\} \right\rangle \quad (189)$$

と書ける。さらに、 $\langle a^\dagger a \rangle$ のような縮約を取る必要があり、 \tilde{a}_{rk}^\dagger の縮約の相手 \tilde{a}_{rk} を $[...]^{n+1}$ の中から選び方が $n+1$ 通りあるので、

$$G_{i,rk}(t, t') = \sum_{i'} \int_K dt_2 (-i) \left\langle T_K \left\{ \tilde{a}_{rk}(t_2) \tilde{a}_{rk}^\dagger(t') \right\} \right\rangle \times t_{rki'}^*(t_2) (-i) \left\langle T_K \left\{ \tilde{d}_i^\dagger(t_2) \tilde{d}_i(t) \right\} \right\rangle \quad (190)$$

$$= \sum_{i'} \int dt_1 G_{ij}(t, t_1) t_{rki'}(t_1) g_{rk}(t_1, t') \quad (191)$$

のようにして、Dyson 方程式が導けた。ここで $G_{ij}(t, t_1)$ はドットの電子の Green 関数であり、 $g_{rk}(t_1, t')$ は電極の電子の Green 関数である。

さらに Langreth の定理も使えて、lesser 成分は

$$G_{i,rk}^<(t, t') = \sum_{i'} \int_K dt_1 t_{rki'}^*(t_1) \left[G_{ij}^R(t, t_1) g_{rk}^<(t_1, t') + G_{ij}^<(t, t_1) g_{rk}^A(t_1, t') \right] \quad (192)$$

となる。電極の Green 関数は

$$g_{rk}^<(t, t') = i f(\epsilon_{rk}) \exp \left[-i \int_{t'}^{t_1} dt_2 \epsilon_{rk}(t_2) \right], \quad (193)$$

$$g_{rk}^A(t, t') = i \theta(-t + t') \exp \left[-i \int_{t'}^{t_1} dt_2 \epsilon_{rk}(t_2) \right] \quad (194)$$

である。さらに電極の波数についての和を電極の状態密度を用いて $\int d\omega \rho_r$ と書き直し、準位の広がり幅を

$$\Gamma^r(\omega) = 2\pi \rho_r(\omega) t_{rj}(\omega, t) t_{ri}(\omega, t_1) \exp \left[-i \int_{t_1}^t dt_2 \epsilon_r(\omega, t_2) \right] \quad (195)$$

と定義する。ここで $t_{rki}(t) = t_{ri}(\omega)$ である。以上より、

$$J_r = -\frac{2e}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 \int \frac{d\omega}{2\pi} \text{ImTr} \left\{ e^{-i(t-t_1)\omega} \Gamma(\omega, t_1, t) \cdot \right. \\ \left. \times \left[G^<(t, t_1) + f_r(\omega) G^R(t, t_1) \right] \right\} \quad (196)$$

Tr はドットの固有状態についてとる。広がり幅の時間依存性を無視する近似では t_1 積分を Fourier 変換として実行できて、 $J = (J_L + J_R)/2$ として対称化した電流は

$$J = \frac{ie}{2\hbar} \int \frac{d\omega}{2\pi} \text{Tr} \left\{ \left[\Gamma^L(\omega) - \Gamma^R(\omega) \right] G^<(\omega) \right. \\ \left. + \left[f_L(\omega) \Gamma^L(\omega) - f_R(\omega) \Gamma^R(\omega) \right] \left[G^R(\omega) - G^A(\omega) \right] \right\} \quad (197)$$

となる。

付録 C 特性関数の対称性

特性関数に時間反転対称性を課することによって、次のような条件式を得ることが出来ることを示す：

$$\mathcal{Z}(\{\chi_{cr}, \chi_{hr}\}; B) = \mathcal{Z}(\{-\chi_{cr} + iA_{cr}, -\chi_{hr} + iA_{hr}\}; -B). \quad (198)$$

ここで、 A_{cr}, A_{hr} は各端子において定義される量で、ある二つの端子について差を取ればそれが親和力となる量である。特性関数について成り立つ場合、同様に流れの生成関数についても成り立ち、

$$\mathcal{F}(\chi_c, \chi_h; B) = \mathcal{F}(-\chi_c + i\mathcal{A}_c, -\chi_h + i\mathcal{A}_h; -B). \quad (199)$$

ただし、生成関数についてはここでは二端子の式を書いた。特性関数は分配関数に計数場を含ませたものであるが、定義より演算子形式で次のような形に書くことが出来る：

$$\mathcal{Z}(\{\chi_{cr}, \chi_{hr}\}; B) = \text{Tr} \left[\rho_0 V^\dagger e^{iH\tau} V^2 e^{-iH\tau} V^\dagger \right], \quad (200)$$

$$V = \prod_r \exp[-i(\chi_{hs} H_r + \chi_{cs} N_r)/2], \quad (201)$$

$$\rho_0 = \prod_r \frac{\exp[-\beta_r(H_r - \mu_r N_r)]}{\text{Tr} \exp[-\beta_r(H_r - \mu_r N_r)]} \quad (202)$$

$$= \prod_r \frac{\exp[A_{hr} H_{hr} + A_{cr} N_{cr}]}{\text{Tr} \exp[A_{hr} H_{hr} + A_{cr} N_{cr}]}. \quad (203)$$

ここで時間反転演算子 Θ を用いる。時間反転演算子とは、その性質が

$$\Theta i \Theta^\dagger = -i, \quad (204)$$

$$\langle n | O | n' \rangle = \langle \tilde{n}' | \Theta O^\dagger \Theta^\dagger | \tilde{n} \rangle, \quad (205)$$

$$|\tilde{n}\rangle = \Theta |n\rangle \quad (206)$$

のようなものである。すると、

$$\mathcal{Z}(\{\chi_{cr}, \chi_{hr}\}; B) = \text{Tr} [\rho_0 V^\dagger e^{iH\tau} V^2 e^{-iH\tau} V^\dagger] \quad (207)$$

$$= \sum_n \langle n | \rho_0 V^\dagger e^{iH\tau} V^2 e^{-iH\tau} V^\dagger | n \rangle \quad (208)$$

$$= \sum_{\tilde{n}} \langle \tilde{n} | \Theta (\rho_0 V^\dagger e^{iH\tau} V^2 e^{-iH\tau} V^\dagger)^\dagger \Theta^\dagger | \tilde{n} \rangle \quad (209)$$

$$= \sum_{\tilde{n}} \langle \tilde{n} | \Theta (V e^{iH\tau} V^{\dagger 2} e^{-iH\tau} V \rho_0) \Theta^\dagger | \tilde{n} \rangle \quad (210)$$

$$= \sum_{\tilde{n}} \langle \tilde{n} | V^\dagger e^{-iH\tau} V^2 e^{iH\tau} V^\dagger \rho_0 | \tilde{n} \rangle \quad (211)$$

$$= \sum_{\tilde{n}} \langle \tilde{n} | V e^{iH\tau} V^\dagger \rho_0 V^\dagger e^{-iH\tau} V | \tilde{n} \rangle \quad (212)$$

となる。ただし (211) 式で Θ, Θ^\dagger で挟まれた部分を時間反転変換し、(212) 式で対角和の中身を巡回的に回した。よって、

$$V^\dagger \rho_0 V^\dagger \rightarrow V^2, \quad (213)$$

$$V^2 \rightarrow V^\dagger \rho_0 V^\dagger \quad (214)$$

となるような変換を χ_{cr}, χ_{hr} に行えば元の式と形が同じになる。ここで、 $\alpha = c, h$ として

$$\varphi(\chi_{\alpha r}) = -\chi_{\alpha r} + iA_{\alpha r} \quad (215)$$

とするような変換 φ を考える。すると、

$$\varphi(V^2) = \prod_r \exp[-i(\varphi(\chi_{hr})H_r + \varphi(\chi_{cr})N_r)] \quad (216)$$

$$= \prod_r V_r^\dagger \exp[A_{hr}H_r + A_{cr}N_r] V_r^\dagger \quad (217)$$

$$= V^\dagger \rho_0 V^\dagger \quad (218)$$

となる。 $\varphi(\varphi(\chi_{\alpha r})) = \chi_{\alpha r}$ であるから、 $\varphi(V^\dagger \rho_0 V^\dagger) = V^2$ も言える。 $|\tilde{n}\rangle$ は時間反転した状態であることから、磁場 B をひっくり返して $-B$ とすることを用いて、題意の条件式が示せた。

付録 D 熱力学第二法則や線形応答の式の導出

揺らぎの定理からの情報の引き出し方の例として、エントロピー生成率の平均値が正であるという意味の熱力学第二法則及び電流と熱流の線形応答領域における揺動散逸定理を導出する。

揺らぎの定理を

$$P(-I_S) = P(I_S) e^{-I_S} \quad (219)$$

と書く。両辺積分して指数の凸性を用いると

$$1 = \langle e^{-I_S} \rangle \geq e^{-\langle I_S \rangle}. \quad (220)$$

両辺の指数を取り、 -1 をかけると、

$$\langle I_S \rangle \geq 0 \quad (221)$$

となり、エントロピー生成率の平均値が正であることが言えた。

次に揺動散逸定理を示す。 $1 = \langle e^{-I_S} \rangle$ の右辺を展開して $\langle I_S \rangle \sim A$ を用いる。ここで A は親和力の大きさとする：

$$1 = 1 - \langle I_S \rangle + \frac{1}{2} \langle I_S^2 \rangle + O(A^3). \quad (222)$$

エントロピー流を $I_S = A_c I_c + A_h I_h$ と書くと、

$$A_c \langle I_c \rangle + A_h \langle I_h \rangle = \frac{1}{2} (A_c^2 \langle I_c^2 \rangle + A_h^2 \langle I_h^2 \rangle + 2A_c A_h \langle I_c I_h \rangle) + O(A^3) \quad (223)$$

となる。両辺を A_c^2 もしくは A_h^2 で割ったものは

$$\frac{\langle I_c \rangle}{A_c} + \frac{A_h}{A_c^2} \langle I_h \rangle = \frac{1}{2} \left(\langle I_c^2 \rangle + \frac{A_h^2}{A_c^2} \langle I_h^2 \rangle + \frac{2A_h}{A_c} \langle I_c I_h \rangle \right) + O(A), \quad (224)$$

$$\frac{A_c}{A_h^2} \langle I_c \rangle + \frac{\langle I_h \rangle}{A_h} = \frac{1}{2} \left(\frac{A_c^2}{A_h^2} \langle I_c^2 \rangle + \langle I_h^2 \rangle + \frac{2A_c}{A_h} \langle I_c I_h \rangle \right) + O(A) \quad (225)$$

となる。 $A_h \rightarrow 0$ としてから $A_c \rightarrow 0$ 、ないしはその逆を行うことにより、

$$\left. \frac{\langle I_c \rangle}{A_c} \right|_{A=0} = \frac{1}{2} \left. \langle I_c^2 \rangle \right|_{A=0}, \quad (226)$$

$$\left. \frac{\langle I_h \rangle}{A_h} \right|_{A=0} = \frac{1}{2} \left. \langle I_h^2 \rangle \right|_{A=0}. \quad (227)$$

微分コンダクタンスの定義を用いて、親和力を電圧と温度差で書き直すと、

$$G_V = \frac{T}{2} \left\langle I_c^2 \right\rangle \Big|_{V=0}, \quad (228)$$

$$G_T = \frac{T^2}{2} \left\langle I_h^2 \right\rangle \Big|_{\Delta T=0}. \quad (229)$$

のように、電流と熱流の揺動散逸定理が得られた。

付録 E AB リングの生成関数の計算

生成関数を求めるために、測定時間 τ が大きくて定常状態と見なせる場合の特性関数を計算する。電極とドットからなるモデルの作用は、電極・ドット内の電子に対応するグラスマン数をそれぞれ a_{rk}, a_{rk}^*, d, d^* ($r = L, R$) と置くと、

$$S[a_{rk}, a_{rk}^*, d, d^*] = \int_K dt \left[\sum_{r,k} a_{rk}^*(t) (i\partial_t - \epsilon_{rk}) a_{rk}(t) + \sum_j d_j^*(t) (i\partial_t - \epsilon_d) d_j(t) + \sum_{rk} (V_{rk} a_{rk}^*(t) d/j(t) + h.c.) \right] \quad (230)$$

であり、電極の電子のグラスマン数をドットの電子の外源と思えば Kadanoff-Baym 経路上で電極の電子についての積分が簡単に出来て、

$$S_{eff}[d, d^*] = \sum_j \left[\int_K dt d^*(t) (i\partial_t - \epsilon_d) d(t) - \int_K dt dt' d^*(t) \Sigma_d(t, t') d(t) \right] \quad (231)$$

という有効作用が得られる。ここで、 $\Sigma_d^\chi(t, t')$ は計数場込みのドットの自己エネルギーであり、電極 r の波数 k 電子の Green 関数を g_{rk} と表記すると、

$$\Sigma_d^\chi(t, t') = \sum_r \sum_k e^{i\chi(t)} |V_{rk}|^2 g_{rk}(t, t') e^{-i\chi(t)} \quad (232)$$

と書ける。ただし、 $\chi(t)$ は計数場の部分を代表して書いていて、 $\chi(t) = (\chi_{cr} + \epsilon_{rk}\chi_{hr})/2$ のように書ける。特性関数はこの有効作用を用いて

$$Z[\chi] = \int D[d^*, d] \exp(iS_{eff}[\chi]) / Z_d \quad (233)$$

と書ける。 $Z_d = \det(ig_d)^{-1}$ は有効作用を用いて計算したドットの分配関数であり、規格化の役割を果たす。特性関数の対数を計算すると、

$$\ln Z = \ln \left[\frac{\det((ig_d)^{-1} + i\Sigma_d^\chi)}{\det(ig_d^{-1})} \right] \quad (234)$$

$$= \text{Tr} \left[\ln(1 - g_d \Sigma_d^\chi) \right] \quad (235)$$

$$= - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n} \text{Tr} \left[(g_d \Sigma_d^\chi)^n \right] \quad (236)$$

$$\equiv \sum_n \ln Z^{(n)} \quad (237)$$

となる。この各次数において実時間軸に射影してから Keldysh 回転及び Fourier 変換をし、測定時間 τ が十分大きいとして計算し、再び対数としてまとめなおす。具体的に $n=1$ の場合の計算を行う：

$$\ln Z^{(1)} = -\text{Tr}(g_d \Sigma_d^\chi) \quad (238)$$

$$= - \int_C dt dt' g_d(t, t') \Sigma_d^\chi(t', t) \quad (239)$$

$$= - \int \int \frac{d\omega}{2\pi} \frac{d\omega'}{2\pi} \int_{-\tau/2}^{\tau/2} dt dt' e^{-i\omega(t-t')} e^{i\omega'(t-t')} \times \\ \text{Tr}[\tilde{g}_d(\omega) \tau_1 \tilde{\Sigma}_d^\chi(\omega') \tau_1]. \quad (240)$$

ここで、 t, t' 積分を行った出て来た部分は、 $\tau \rightarrow \infty$ の極限で

$$\frac{1}{\tau\omega} \sin \frac{\omega\tau}{2} \rightarrow \delta(\omega), \quad (241)$$

$$\left(\frac{1}{\tau\omega} \sin \frac{\omega\tau}{2} \right)^2 \rightarrow \frac{\tau}{2\pi} \delta(\omega) \quad (242)$$

となることを用いると、

$$\ln Z^{(1)} = -\frac{\tau}{2\pi} \int d\omega \text{Tr}[\tilde{g}_d(\omega) \tau_1 \tilde{\Sigma}_d^\chi(\omega') \tau_1] \quad (243)$$

とまとめることが出来る。高次の項についても同様であり、級数を対数の形にまとめ直すと、

$$\ln Z = \frac{\tau}{2\pi} \int d\omega \text{Tr} \ln [\tau_0 - \tilde{g}_d(\omega) \tau_1 \tilde{\Sigma}_d^\chi(\omega') \tau_1] \quad (244)$$

$$= \frac{\ln(\tilde{g}_d^{-1}(\omega) - \tau_1 \tilde{\Sigma}_d^\chi(\omega') \tau_1)}{\ln(\tilde{g}_d^{-1}(\omega))} \quad (245)$$

となる。これにより、生成関数 \mathcal{F} の解析的な表式が得られた。あとは好きな表示に回転をして、ドットの準位、スピン、Keldysh 空間のインデックスを持った g_d, Σ_d^x を代入して計算すれば良い。

付録 F 実験との対応のためのノート

輸送係数の間の関係式は原理的には実験で確認出来るが、実際の実験で制御出来るのは親和力そのものではなく、温度 T ・温度差 ΔT ・電圧 V などである。そのため、親和力に対する応答ではなく、温度差及び電圧に対する応答として書き直す。ここでは、非線形輸送係数 $L_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}$ に当たるものとして非線形における微分コンダクタンスを

$$G_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(B) = \left. \frac{\partial^{l_1+l_2} \langle \langle I_c^{k_1} I_h^{k_2} \rangle \rangle}{\partial V^{l_1} \partial \Delta T^{l_2}} \right|_{V=0, \Delta T=0}. \quad (246)$$

また、輸送係数の場合と同様に磁場について対称化／反対称化する：

$$G_{l_1, l_2}^{k_1, k_2, \pm}(B) = G_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(B) \pm G_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(-B). \quad (247)$$

親和力についての微分と電圧・温度差についての微分は

$$\left. \frac{\partial}{\partial \mathcal{A}_c} \right|_{\mathcal{A}_c = \mathcal{A}_h = 0} = T \left. \frac{\partial}{\partial V} \right|_{V=0, \Delta T=0}, \quad (248)$$

$$\left. \frac{\partial}{\partial \mathcal{A}_h} \right|_{\mathcal{A}_c = \mathcal{A}_h = 0} = T^2 \left. \frac{\partial}{\partial \Delta T} \right|_{V=0, \Delta T=0} \quad (249)$$

と関係付けられるので、非線形コンダクタンスと輸送係数の関係は、

$$G_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(B) = L_{l_1, l_2}^{k_1, k_2}(B) T^{-l_1-2l_2} \quad (250)$$

となる。具体的な関係式をいくつか再掲すると、

$$G_{00}^{20}(B) = 2TG_{10}^{10}(B), \quad (251)$$

$$TG_{10}^{01}(B) = T^2 G_{01}^{10}(-B), \quad (252)$$

$$TG_{10,+}^{20} = T^2 G_{20,+}^{10} \quad (253)$$

のようになる。

ここでは単位系として $\hbar = e = k_B = 1$ を用いていた。電流の次元は、 $I_c = [e/s] = [J \cdot e / J \cdot s] = [\Gamma \cdot e / h]$ のようになる。ここで適当なエネルギースケールとして Γ を導入した。量子ドットのような系では Γ として準位の広がり幅などをとればよい。同様に

して $I_h = [\Gamma^2/h]$ 、 $V = [\Gamma/e]$ 、 $T = [\Gamma/k_B]$ となるため、ノイズやキュムラントの定義は $\int dt \delta I(t) \delta I(0)$ のようになっていることに注意すれば、非線形コンダクタンスの次元を持つ典型的な量は

$$G_{l_1, l_2}^{k_1, k_2} = \frac{\Gamma^{k_1+2k_2-l_1-l_2} e^{k_1+l_1} k_B^{l_2}}{h} \quad (254)$$

と求まる。これを用いて非線形コンダクタンスを $G_{1,0}^{1,0} = g_{1,0}^{1,0} e^2/h$ のように規格化すれば、関係式は

$$\frac{e^2}{h} g_{00}^{20}(B) = \frac{e^2}{h} 2T g_{10}^{10}(B), \quad (255)$$

$$\frac{e\Gamma^2}{h} T g_{10}^{01}(B) = \frac{e\Gamma^2}{h} T^2 g_{01}^{10}(-B), \quad (256)$$

$$\frac{e^3\Gamma^3}{h} T g_{10,+}^{20} = \frac{e^3\Gamma^3}{h} T^2 g_{20,+}^{10} \quad (257)$$

のように書き直すことが出来る。温度は Γ でスケールした。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、暖かく御指導をしてくださいました加藤岳生准教授に深く感謝します。この研究室に入れて良かったと思います。内海裕洋助教には完全計数統計を学ぶ貴重なきっかけをいただき、レジュメや議論には Keldysh 形式の勉強の上で影響を受けました。また、研究室生活を楽しく過ごすことが出来たのは研究室の先輩及び同期である吉見一慶さん、濱本雄治さん、竹内維斗文さん、田村徳崇君、それとポスドクとして赴任されていた井村健一郎さんのおかげです。そして、江口浩子さんをはじめとした秘書の方々無しでは研究生活自体が立ち行きません。ここに皆様にお礼を申し上げます。

共同研究者の、宮下研の斎藤圭司助教には有益な議論をしていただきました。また、行く先々で議論やセミナーや雑談などに付き合っていたいただいた皆様、そして、日常生活を過ごす上で色んな時間を共有した友人らにも感謝します。

最後になりましたが、家族の援助が無ければ修士の生活自体がありませんでした。物理に専念出来たのは博士課程に進むことを快く諒解していただいたのおかげです。ありがとうございます。

参考文献

- [1] L. P. Kouwenhoven L. L. Sohn and G. Schön. *Mesoscopic Electron Transport*. Springer-Verlag, 1997.
- [2] L. W. Molenkamp, Th. Gravier, H. van Houten, O. J. A. Buijk, M. A. A. Mabesoone, and C. T. Foxon. *Phys. Rev. Lett.*, 68(25):3765–3768, Jun 1992.
- [3] A. A. M. Staring, L. W. Molenkamp, B. W. Alphenaar, H. van Houten, O. J. A. Buyk, M. A. A. Mabesoone, C. W. J. Beenakker, and C. T. Foxon. *EPL (Europhysics Letters)*, 22(1):57–62, 1993.
- [4] A. S. Dzurak, C. G. Smith, C. H. W. Barnes, M. Pepper, L. Martín-Moreno, C. T. Liang, D. A. Ritchie, and G. A. C. Jones. *Phys. Rev. B*, 55(16):R10197–R10200, Apr 1997.
- [5] R. Scheibner, H. Buhmann, D. Reuter, M. N. Kiselev, and L. W. Molenkamp. *Physical Review Letters*, 95(17):176602, 2005.
- [6] R. Scheibner, E. G. Novik, T. Borzenko, M. König, D. Reuter, A. D. Wieck, H. Buhmann, and L. W. Molenkamp. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(4):041301, 2007.
- [7] R. Scheibner, M. König, D. Reuter, A. D. Wieck, H. Buhmann, and L. W. Molenkamp. arXiv:cond-mat/0703514, 2007.
- [8] C. W. J. Beenakker and A. A. M. Staring. *Phys. Rev. B*, 46(15):9667–9676, Oct 1992.
- [9] M. Turek and K. A. Matveev. *Phys. Rev. B*, 65(11):115332, Mar 2002.
- [10] K. A. Matveev and A. V. Andreev. *Phys. Rev. B*, 66(4):045301, Jul 2002.
- [11] T. E. Humphrey, R. Newbury, R. P. Taylor, and H. Linke. *Phys. Rev. Lett.*, 89(11):116801, Aug 2002.
- [12] E. A. Hoffmann, N. Nakpathomkun, A. I. Persson, H. Linke, H. A. Nilsson, and L. Samuelson. *Applied Physics Letters*, 91(25):252114, 2007.
- [13] Takeshi Nakanishi and Takeo Kato. *Journal of the Physical Society of Japan*, 76(3):034715, 2007.
- [14] Rui Sakano, Tomoko Kita, and Norio Kawakami. *Journal of the Physical Society of Japan*, 76(7):074709, 2007.
- [15] Neil W. Ashcroft and N. David Mermin. *Solid State Physics*. Brooks Cole, 1976.

- [16] Lars Onsager. *Phys. Rev.*, 37(4):405–426, Feb 1931.
- [17] H. B. G. Casimir. *Rev. Mod. Phys.*, 17(2-3):343–350, Apr 1945.
- [18] David Sánchez and Markus Büttiker. *Phys. Rev. Lett.*, 93(10):106802, Sep 2004.
- [19] Tatsuya Fujii. *Journal of the Physical Society of Japan*, 76(4):044709, 2007.
- [20] R. Kubo, M. Toda, and N. Hashitsume. *Statistical Physics II Nonequilibrium Statistical Mechanics*. Springer-Verlag, 1991.
- [21] Takahiro Harada and Shin ichi Sasa. *Physical Review Letters*, 95(13):130602, 2005.
- [22] Keiji Saito. *EPL (Europhysics Letters)*, 83:50006–50009, 2008.
- [23] Denis J. Evans, E. G. D. Cohen, and G. P. Morriss. *Phys. Rev. Lett.*, 71(15):2401–2404, Oct 1993.
- [24] Denis J. Evans and Debra J. Searles. *Phys. Rev. E*, 50(2):1645–1648, Aug 1994.
- [25] Pierre Gaspard. *The Journal of Chemical Physics*, 120(19):8898–8905, 2004.
- [26] Udo Seifert. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 37(42):517–521, 2004.
- [27] Jorge Kurchan. *Journal of Physics A: Mathematical and General*, 31(16):3719–3729, 1998.
- [28] G. Gallavotti and E. G. D. Cohen. *Phys. Rev. Lett.*, 74(5-6):2694–2697, Apr 1995.
- [29] G. Gallavotti and E. G. D. Cohen. *J. Stat. Phys.*, 80(5-6):931–970, Sep 1995.
- [30] Gary Ayton and Denis Evans. *J. Stat. Phys.*, 97(3-4):811–815, Nov 1999.
- [31] Giovanni Gallavotti. *Phys. Rev. Lett.*, 77(21):4334–4337, Nov 1996.
- [32] Gavin E. Crooks. *Phys. Rev. E*, 60(3):2721–2726, Sep 1999.
- [33] Gavin E. Crooks. *Phys. Rev. E*, 61(3):2361–2366, Mar 2000.
- [34] Giovanni Gallavotti. *Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science*, 8(2):384–392, 1998.
- [35] Jorge Kurchan. arXiv:cond-mat/0007360, 2000.
- [36] Christopher Jarzynski and Daniel K. Wójcik. *Phys. Rev. Lett.*, 92(23):230602, Jun 2004.
- [37] Keiji Saito and Abhishek Dhar. *Physical Review Letters*, 99(18):180601, 2007.
- [38] Keiji Saito and Yasuhiro Utsumi. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 78(11):115429, 2008.
- [39] Yasuhiro Utsumi and Keiji Saito. arXiv:cond-mat/0810.1113, 2008.
- [40] Massimiliano Esposito and Shaul Mukamel. *Physical Review E (Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics)*, 73(4):046129, 2006.

- [41] T.Monnai and S.Tasaki. arXiv:cond-mat/0308337, 2003.
- [42] Massimiliano Esposito, Upendra Harbola, and Shaul Mukamel. arXiv:cond-mat/0811.3717, 2008.
- [43] Denis J. Evans and Debra J. Searles. *Advances in Physics*, 51(7):1529–1585, 2002.
- [44] 早川尚男. **非平衡統計力学**. サイエンス社, 2007.
- [45] 田崎清明. **日本物理学会誌**, 63(10):797–804, Oct 2008.
- [46] Teruhisa S. Komatsu and Naoko Nakagawa. *Physical Review Letters*, 100(3):030601, 2008.
- [47] D. Collin, F. Ritort, C. Jarzynski, S. B. Smith, I. Tinoco, and C. Bustamante. *Nature*, 437:231–234, 2005.
- [48] G. M. Wang, E. M. Sevick, Emil Mittag, Debra J. Searles, and Denis J. Evans. *Phys. Rev. Lett.*, 89(5):050601, Jul 2002.
- [49] G. M. Wang, J. C. Reid, D. M. Carberry, D. R. M. Williams, E. M. Sevick, and Denis J. Evans. *Physical Review E (Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics)*, 71(4):046142, 2005.
- [50] S. Schuler, T. Speck, C. Tietz, J. Wrachtrup, and U. Seifert. *Physical Review Letters*, 94(18):180602, 2005.
- [51] C. Tietz, S. Schuler, T. Speck, U. Seifert, and J. Wrachtrup. *Physical Review Letters*, 97(5):050602, 2006.
- [52] Wei Lu, Zhongqing Ji, Loren Pfeiffer, K. W. West, and A. J. Rimberg. *Nature*, 423:422–425, 2003.
- [53] B. Reulet, J. Senzier, and D. E. Prober. *Phys. Rev. Lett.*, 91(19):196601, Nov 2003.
- [54] T. Fujisawa, T. Hayashi, Y. Hirayama, H. D. Cheong, and Y. H. Jeong. *Applied Physics Letters*, 84(13):2343–2345, 2004.
- [55] Jonas Bylander, Tim Duty, and Per Delsing. *Nature*, 434:361–364, 2005.
- [56] Yu. Bomze, G. Gershon, D. Shovkun, L. S. Levitov, and M. Reznikov. *Phys. Rev. Lett.*, 95(17):176601, Oct 2005.
- [57] S. Gustavsson, R. Leturcq, B. Simović, R. Schleser, T. Ihn, P. Studerus, K. Ensslin, D. C. Driscoll, and A. C. Gossard. *Physical Review Letters*, 96(7):076605, 2006.
- [58] Toshimasa Fujisawa, Toshiaki Hayashi, Ritsuya Tomita, , and Yoshiro Hirayama. *Science*, 312:1634–1636, 2006.
- [59] A. V. Timofeev, M. Meschke, J. T. Peltonen, T. T. Heikkilä, and J. P. Pekola. *Physical Review Letters*, 98(20):207001, 2007.

- [60] M. Büttiker. *Phys. Rev. Lett.*, 57(14):1761–1764, Oct 1986.
- [61] L. V. Keldysh. *Sov. Phys. JETP*, 20:1018, 1965.
- [62] Alex Kamenev. arXiv:cond-mat/0109316, 2001.
- [63] J. Rammer and H. Smith. *Rev. Mod. Phys.*, 58(2):323–359, Apr 1986.
- [64] L. D. Landau. *Course of Theoretical Physics: Physical Kinetics (Course of Theoretical Physics Series)*. Butterworth-Heinemann, 1981.
- [65] Hartmut Haug and Antti-Pekka Jauho. *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors (Springer-Verlag Series in Solid-State Sciences)*. Springer-Verlag, 2007.
- [66] J. Rammer. *Quantum Field Theory of Non-equilibrium States*. Cambridge University Press, 2007.
- [67] Alexandre M. Zagoskin. *Quantum Theory of Many-Body Systems*. Springer-Verlag, 1998.
- [68] L. P. Gorkov A. A. Abrikosov and I. E. Dzyaloshinski. *METHODS OF QUANTUM FIELD THEORY IN STATISTICAL PHYSICS*. Dover, 1963.
- [69] Antti-Pekka Jauho, Ned S. Wingreen, and Yigal Meir. *Phys. Rev. B*, 50(8):5528–5544, Aug 1994.
- [70] J. W. Negele and Henri Orland. *Quantum Many-Particle Systems (Frontiers in Physics)*. Perseus Books, 1988.
- [71] K. Okumura and Y. Tanimura. *Phys. Rev. E*, 53(1):214–227, Jan 1996.
- [72] Yasuhiro Utsumi, Hiroshi Imamura, Masahiko Hayashi, and Hiromichi Ebisawa. *Phys. Rev. B*, 66(2):024513, Jul 2002.
- [73] R. Shankar. *Rev. Mod. Phys.*, 66(1):129–192, Jan 1994.
- [74] L. S. Levitov and G. B. Lesovik. *JETP Letters*, 58(3):230–235, 1993.
- [75] L.S.Levitov and G.B.Lesovik. arXiv:cond-mat/9401004, 1994.
- [76] Leonid S. Levitov, Hyunwoo Lee, and Gordey B. Lesovik. *Journal of Mathematical Physics*, 37(10):4845–4866, 1996.
- [77] S. Pilgram, A. N. Jordan, E. V. Sukhorukov, and M. Büttiker. *Phys. Rev. Lett.*, 90(20):206801, May 2003.
- [78] O. Sauret and D. Feinberg. *Phys. Rev. Lett.*, 92(10):106601, Mar 2004.
- [79] Markus Kindermann and Björn Trauzettel. *Physical Review Letters*, 94(16):166803, 2005.
- [80] D. A. Bagrets and Yu. V. Nazarov. *Phys. Rev. Lett.*, 94(5):056801, Feb 2005.

- [81] A. Komnik and A. O. Gogolin. *Physical Review Letters*, 94(21):216601, 2005.
- [82] Yasuhiro Utsumi, Dmitri S. Golubev, and Gerd Schön. *Physical Review Letters*, 96(8):086803, 2006.
- [83] A. O. Gogolin and A. Komnik. *Physical Review Letters*, 97(1):016602, 2006.
- [84] W. Belzig and Yu. V. Nazarov. *Phys. Rev. Lett.*, 87(6):067006, Jul 2001.
- [85] W. Belzig and Yu. V. Nazarov. *Phys. Rev. Lett.*, 87(19):197006, Oct 2001.
- [86] J. C. Cuevas and W. Belzig. *Phys. Rev. Lett.*, 91(18):187001, Oct 2003.
- [87] Yu. V. Nazarov and D. A. Bagrets. *Phys. Rev. Lett.*, 88(19):196801, Apr 2002.
- [88] I. Safi and H. Saleur. *Phys. Rev. Lett.*, 93(12):126602, Sep 2004.
- [89] Heidi Förster, Sebastian Pilgram, and Markus Büttiker. *Phys. Rev. B*, 72(7):075301, Aug 2005.
- [90] A. Komnik and H. Saleur. *Physical Review Letters*, 96(21):216406, 2006.
- [91] S. Pilgram, P. Samuelsson, H. Förster, and M. Büttiker. *Physical Review Letters*, 97(6):066801, 2006.
- [92] Jun Ohkubo. *Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment*, 2008(02):P02011 (12pp), 2008.
- [93] Yuriy Makhlin and Alexander D. Mirlin. *Phys. Rev. Lett.*, 87(27):276803, Dec 2001.
- [94] Alessandro Braggio, Jürgen König, and Rosario Fazio. *Physical Review Letters*, 96(2):026805, 2006.
- [95] C. Flindt, T. Novotný, and A.-P. Jauho. *EPL (Europhysics Letters)*, 69(3):475–481, 2005.
- [96] Christian Flindt, Tomáš Novotný, Alessandro Braggio, Maura Sassetti, and Antti-Pekka Jauho. *Physical Review Letters*, 100(15):150601, 2008.
- [97] F. Hassler, M. V. Suslov, G. M. Graf, M. V. Lebedev, G. B. Lesovik, and G. Blatter. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 78(16):165330, 2008.
- [98] eds. by Yuli V. Nazarov. *Quantum Noise in Mesoscopic Physics*. NATO Science Series, 2002.
- [99] Ya. M. Blanter and M. Büttiker. *Physics Reports*, 336(1-2):1 – 166, 2000.
- [100] C. L. Kane and Matthew P. A. Fisher. *Phys. Rev. Lett.*, 72(5):724–727, Jan 1994.
- [101] P. Fendley, A. W. W. Ludwig, and H. Saleur. *Phys. Rev. Lett.*, 75(11):2196–2199, Sep 1995.
- [102] L. Saminadayar, D. C. Glattli, Y. Jin, and B. Etienne. *Phys. Rev. Lett.*, 79(13):2526–

2529, Sep 1997.

- [103] J. C. Cuevas, A. Martín-Rodero, and A. Levy Yeyati. *Phys. Rev. Lett.*, 82(20):4086–4089, May 1999.
- [104] Y. Naveh and D. V. Averin. *Phys. Rev. Lett.*, 82(20):4090–4093, May 1999.
- [105] R. Cron, M. F. Goffman, D. Esteve, and C. Urbina. *Phys. Rev. Lett.*, 86(18):4104–4107, Apr 2001.
- [106] Kuang-Chao Chou, Zhao-Bin Su, Bai-Lin Hao, and Lu Yu. *Phys. Rep.*, 118:1, 1985.
- [107] Alex Kamenev and H. (edt) et al. Bouchiat. *Nanophysics : Coherence and Transport(Les Houches, Volume Session LXXXI)*. Elsevier, 2005.
- [108] R. Dean Astumian. *Physical Review Letters*, 101(4):046802, 2008.
- [109] David Sánchez and Kicheon Kang. *Physical Review Letters*, 100(3):036806, 2008.
- [110] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh. *Nature*, 455:778–781, 2008.